Absolute Messung des Spaltquerschnittes von ^{239}Pu und des totalen Wirkungsquerschnittes von ^{6}Li und schwerem Wasser für thermische Neutronen

INAUGURAL-DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde
des
Fachbereichs Physik
der
Philipps-Universität Marburg/Lahn

vorgelegt von

Wilhelm Becker
aus Wolfhagen

Marburg/Lahn 1973

Druck: Görich & Weiershäuser, Marburg (Lahn)

Absolute Messung des Spaltquerschnittes von ^{239}Pu und des totalen Wirkungsquerschnittes von ^{6}Li und schwerem Wasser für thermische Neutronen

INAUGURAL - DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde
des
Fachbereichs Physik
der
Philipps-Universität Marburg/Lahn

vorgelegt von

Wilhelm Becker

aus Wolfhagen

Marburg/Lahn 1973

Druck: Görich & Weiershäuser, Marburg (Lahn)

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Von dem Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg/Lahn als

Dissertation angenommen am 8. Mai 1973

Tag der mündlichen Prüfung 25. Mai 1973

Berichterstatter: Prof. Dr. W. Walcher

Mitberichterstatter: Dr. A. J. Deruytter

Voor mijn lief dochtertje Ann en
schattig zoontje Wim

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546019_0029

INHALTSVERZEICHNIS

		Seite
Zusammenfassung		4
PLUTONIUM		7
1. Einleitung		7
2. Messmethode		10
3. Targetherstellung und Absolutzählung der Atome		13
3.1	Pu - Target	13
3.2	B - Target	19
4. Experimenteller Aufbau		21
4.1	Chopper	21
4.2	Zählkammer	22
4.3	Elektronik und Messverfahren	25
5. Auswertverfahren		26
5.1	Aufbereitung der Messdaten C_f und C_α	26
5.2	Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeiten ϵ_f und ϵ_γ	29
6. Ergebnisse der Messung		33
6.1	Spaltquerschnitt	33
6.2	Fehler von σ_f^o	37
7. $g_f(T)$ - Faktor von Westcott		40

		Seite
8. Interpretation des Spaltquerschnitts		43
8.1	Einleitung	43
8.2	Interferenzformel	44
8.3	J - Werte	47
8.4	Auflösungsfunktion	50
8.5	Ergebnisse und Diskussion	52
LITHIUM		58
9. Einleitung		58
10. Transmissionsmethode		60
11. Experimentelle Anordnung und Verfahren		61
12. Herstellung und Eigenschaften der Proben		62
13. Auswertung der Messergebnisse		67
14. Ergebnisse und Diskussion		69
SCHWERES WASSER		75
15. Einleitung		75
16. Totaler Wirkungsquerschnitt		75
17. Interpretation		77
ANHANG		83
A 1 Totzeitkorrekturformel		83
A 2 Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes		87
A 3 Kalibrierung der Flugzeitachse		89
A 3.1	Prinzip der Flugzeitkalibrierung	89
A 3.2	Anwendung auf die Li-Messung	90
A 3.3	Anwendung auf die Pu-Messung	96

		Seite
A 4	Mittlerer Flugweg (BF_3 - Zählrohr)	97
A 5	Beschreibung des gemessenen Neutronenspektrums	98
A 6	Einfluss der Auflösung	101
A 7	Spezifische Aktivität des Pu - Targets	102
A 8	Chopper Funktionen	103
A 9	α - Pile - up Spektrum	105
A10	Geometriefaktor	108
A11	Vielfachstreuung	110
Literaturverzeichnis		113

ZUSAMMENFASSUNG

Die Wirkungsquerschnitte für thermische Neutronen (Energiebereich 0,01 - 0,1 eV) werden mit einem mechanischen Flugzeitspektrometer an dem tangentialen Neutronenkanal T-7 des belgischen BR2-Reaktors gemessen.

1. Die hier verwendete Methode - Messung des Spaltquerschnitts als Funktion der Neutronenenergie, Verwendung einer dünner Pu-Schicht, Zählung der Spaltfragmente unter kleinem Raumwinkel mit einem Halbleiterdetektor - zur absoluten Bestimmung des Spaltquerschnitts bei 0,0253 eV ist geeigneter als die bisher benutzte Methode anderer Autoren - Messung integral über ein Neutronenspektrum, Verwendung von 2π - oder 4π -Ionisationskammern mit dicken Pu-Schichten.

Das mit einem ^{239}Pu-Target gleichzeitig gemessene Flugzeit- und Impulshöhenspektrum wird mit dem mit einem ^{10}B-Target gemessenen verglichen. Die Auflösung der Impulshöhenspektren der mit einem Oberflächensperrschichtdetektor gezählte Spaltfragmenten der ^{239}Pu(n, f)-Reaktion und der α-Teilchen der ^{10}B(n, α)^{7}Li-Reaktion ist ausgezeichnet. Keine aufgestockten γ-Impulse (Pile-up) des radioaktiven ^{239}Pu stören das registrierte Impulshöhenspektrum der Spaltfragmente.

Die Anzahl der ^{239}Pu-Targetatome wird durch eine γ-Absolutzählung und der ^{10}B-Targetatome durch eine Wägung bestimmt. Die Targets werden hinsichtlich der Homogenität, der chemischen Reinheit und der Isotopenzusammensetzung gründlich untersucht. Daneben wird die ^{10}B-Masse des Targets mit Hilfe einer Zählung der (n, γ)-Reaktionen überprüft.

Die Anpassung des gemessenen Spaltquerschnitts mit einer Interferenzkurve ergibt für den Spaltquerschnitt bei 0,0253 eV

$$\sigma_f^o = 740,7 \pm 3,4 \text{ b } (\pm 0,46\%)$$

Der aus dem gemessenen Verlauf des Spaltquerschnitts berechnete Westcott g_f-Faktor für Maxwell-Neutronen mit der Temperatur T = 20,44°C beträgt

$$g_f = 1,0540 \pm 0,0018$$

Mit einer Interferenzformel (Niveaumatrix $A_{\lambda\lambda'}$) wird der Spaltquerschnitt von ^{239}Pu bis zu der Neutronenenergie von 20 eV berechnet. Aus einem Vergleich mit experimentellen Werten folgt für die 15,5 eV-Resonanz der Spin J = 0.

2. Die Neutronen-Transmission zweier Lithiumsulfat-Proben wird gemessen. In der einen Probe befindet sich ^{6}Li und ^{7}Li in natürlicher Zusammensetzung und in der zweiten ist ^{6}Li zu 99,0% angereichert. Die Anzahl der Lithiumsulfat-Moleküle wird durch eine Wägung bestimmt.

Das vorläufige mit der natürlichen Li-Probe erhaltene Ergebnis für den 0,0253 eV-Absorptionsquerschnitt der ^{6}Li(n, α)^{3}H-Reaktion beträgt

$$\sigma_{n,\alpha}^o = 939 \pm 20 \text{ b } (\pm 2,1\%)$$

Endgültige Angaben über die Isotopenzusammensetzung sowie die Definition der angereicherten Li-Probe stehen noch aus.

3. Ebenfalls wird aus einer Messung der Neutronen-Transmission einer Schwerwasser-Probe der totale Wirkungsquerschnitt berechnet.

Der Fehler des Wirkungsquerschnitts für den Flugzeitbereich 300 - 600 /us/m ist 0,13%.

Der Wirkungsquerschnitt zeigt im thermischen Neutronenbereich einen Verlauf, der sich nicht unter Zugrundelegung von verfeinerten dynamischen Streumodellen beschreiben lässt.

PLUTONIUM

1. Einleitung

Die Wirkungsquerschnitte für neutroneninduzierte Spaltung werden im allgemeinen mit Flugzeitspektrometern gemessen. Das sind Geräte, die aus einer gepulsten Neutronenquelle, einem abgeschirmten Neutronenflugweg und einem Detektor bestehen. Ein Startsignal, das die Neutronenquelle zusammen mit dem Neutronenpuls liefert und ein Stopsignal vom Detektor bestimmen die Flugzeit und damit die Energie der Neutronen. Die Häufigkeit der Stopsignale bei fester Flugzeit sind ein Mass für den Spaltquerschnitt bei der entsprechenden Neutronenenergie. Werden Flugzeit und Spaltausbeute in einem Kanalanalysator registriert, so erhält man Spektren, die bis auf eine Normierungskonstante den Spaltquerschnitt als Funktion der Neutronenflugzeit und nach trivialer Umrechnung auch der Energie beschreiben. Die Normierung dieser Art von Messungen geschieht durch Vergleich mit dem Resultat einer sogenannten Eichmessung. Das ist die Messung des Spaltquerschnittes bei einer Neutronenenergie von 0,0253 eV oder einer Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/s relativ zu einem Standard-Wirkungsquerschnitt, z.B. zum (n, α)-Querschnitt des ^{10}B, wobei die Zahl der bestrahlten Targetatome sowie die Zählausbeute bekannt sein müssen.

Der aus der Eichmessung gewonnene Wert des Spaltquerschnitts für die Energie 0,0253 eV kann wiederum zur Eichung von Flugzeitspektren in höheren Energiebereichen herangezogen werden: Oft werden Flugzeitspektren aus messtechnischen Gründen in verschiedenen, sich überlappenden Teilabschnitten gemessen. Sogenannte Resonanzintegrale

$$I_r = \int_{\text{Spaltresonanz}} \sigma_f(E) \frac{dE}{E}$$

$$E_o - \Delta E \leq E_o \leq E_o + \Delta E$$

ausgewählt aus dem sich überlappenden Teil der Spektren, dienen dann der indirekten oder Quernormierung (englisch: cross normalization).

Wegen der Bedeutung des Spaltquerschnittes σ_f^o bei der Neutronenenergie von 0,0253 eV für die Normierung der Flugzeitspektren in allen Energiebereichen ist für seine Bestimmung eine hohe Genauigkeit ($\pm$ 0,5%) zu fordern.

Für ^{239}Pu sind in Tabelle 1.1 und Figur 1.1 die vom BNL (1965) und die durch die IAEA (International Atomic Energy Agency, Vienna) von WESTCOTT et al., 1965 und HANNA et al., 1969 publizierten 2200 m/s-Spaltquerschnitte aufgeführt. Die IAEA veröffentlicht alle 4 Jahre eine Übersicht der 2200 m/s-Konstanten für die spaltbaren Isotope ^{233,235}U und ^{239,241}Pu zusammen mit empfohlenen Werten. In dieser Übersicht werden publizierte Messresultate verbessert (oder auch verworfen), wenn genauere Werte für die bei ihrer Bestimmung benutzten Normierungsgrössen vorliegen.

Figur 1.1 zeigt eine deutliche Streuung der bisherigen Messungen. HANNA et al. empfiehlt drei Werte für den ^{239}Pu-Spaltquerschnitt, wovon zwei integral für das Reaktorspektrum und einer energieabhängig mit dem Flugzeitspektrometer gemessen sind. Integrale Messungen setzen eine genaue Kenntnis des g-Faktors von WESTCOTT (Abschn. 7) und des Reaktorspektrums voraus. Der mit dem Flugzeitspektrometer gemessene Wert (RAFFLE, 1959) liegt weit ausserhalb der Fehlergrenzen des von der IAEA empfohlenen Wertes.

Tabelle 1.1: 2200 m/s-Spaltquerschnitte von ^{239}Pu

	Autoren		σ_f^o (b)	Messmethode
BNL (1965)	Tunnicliffe	(1951)	688 ± 60	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{10}B(n,\alpha)$ mit 0, 5 eV Neutr.
	Pratt et al.	(1956)	713 ± 5	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{235}U(n, f)$ mit Reaktorspektrum.
	Leonard et al.	(1957)	680 ± 23 710	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{10}B(n,\alpha)$ und $^{235}U(n, f)$ mit 0, 1 eV Neutronen.
	Bigham et al.	(1958)	741 ± 5	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{233}U(n, f)$ mit Reaktorspektrum.
	Raffle	(1959)	704 ± 20	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{10}B(n,\alpha)$. Flugzeitexp. (0, 019 - 0, 034 eV).
	Bigham	(1964)	754	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{235}U(n, f)$ mit Reaktorspektrum
Westcott et al. (1965)	Bigham et al.	(1958)	742, 7 ± 5, 6	Mess. σ_a/σ_f mit 0, 0011 eV Neutronen
	Cocking	(1958)	760 ± 30	
	Raffle	(1959)	702 ± 20	
Hanna et al. (1969)	Bigham et al.	(1958)	742, 81 ± 5, 35	Vergl. Zählr. ^{239}Pu (n, f) mit $^{59}Co(n,\gamma)$ mit Reaktorspektrum
	Raffle	(1959)	702, 1 ± 23, 9	
	Keith et al.	(1968)	741, 92 ± 6, 75	
Empfohlener Wert			741, 6 ± 3, 1	
	Borcea et al.	(1972)	739, 6 ± 7, 9	

Fig. 1.1 2200 m/s - SPALTQUERSCHNITTE VON ^{239}Pu

Die in der vorliegenden Arbeit beschriebene Bestimmung des ^{239}Pu-Spaltquerschnitts hat gegenüber den bisherigen Messungen folgende Vorteile:
Die Spaltquerschnitte werden für einen grösseren Energiebereich (0,01 - 0,1 eV) gemessen und aus der Beschreibung der Messwerte mit einer physikalischen Kurve der 2200 m/s Spaltquerschnitt hergeleitet.

Gegenüber 4π oder 2π Ionisationskammern haben die verwendeten Oberflächensperrschichtdetektoren eine gute Auflösung des Impulshöhenspektrums.
Ausserdem ist der Anteil der nichtregistrierten Spaltfragmente unterhalb der Diskriminatorschwelle (Extrapolation zum Energienullpunkt) gering. Daneben kann der Einfluss der α -Pile-up Impulse des stark radioaktiven ^{239}Pu, die eine Absolutzählung der Spaltfragmente erschweren, durch die passende Wahl einer Detektorblende und durch eine geeignete Diskriminatoreinstellung vernachlässigt werden.

Die bei der Messung verwendeten Targets werden hinsichtlich der Homogenität, der chemische Reinheit und der Isotopenzusammenstellung gründlich untersucht.

2. Messmethode

Die Wirkungsquerschnitte als Funktion der Neutronenenergie werden mit einem mechanischen Flugzeitspektrometer gemessen:

Ein drehender Rotor (Fig. 2.1) lässt während einer kurzen Öffnungszeit gerichtete Neutronen verschiedener Geschwindigkeiten v (hauptsächlich Maxwellspektrum, siehe A5) durch.
Die gepulsten Neutronen durchfliegen den Flugweg L (Abstand Rotorachse - Detektor) mit einer Flugzeit t = L/v. Im Flug-

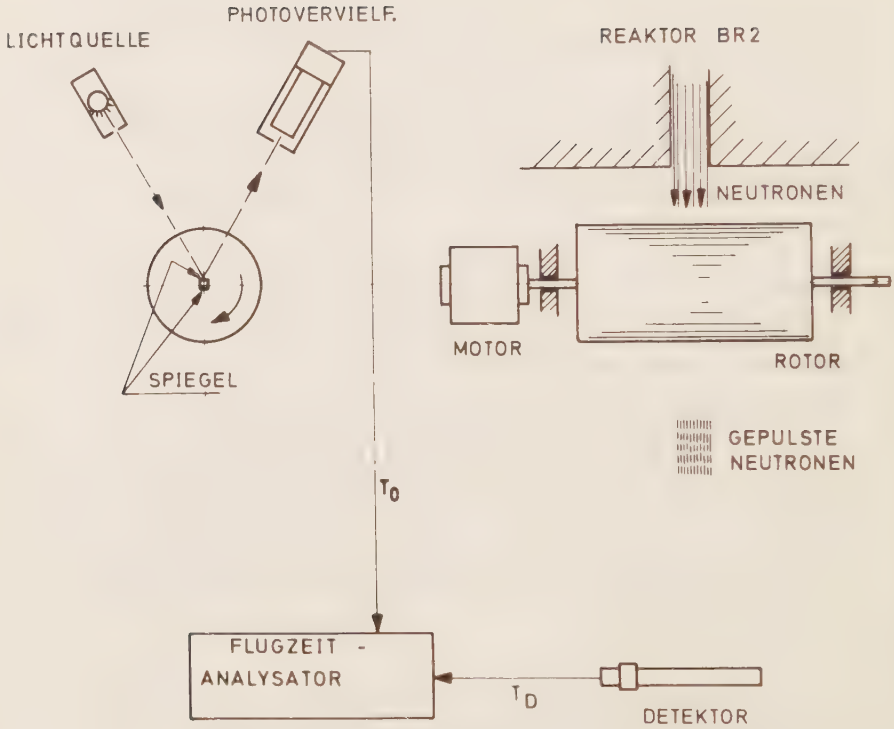

FIG.2.1 Prinzip eines Flugzeitspektrometers

zeitanalysator werden die Detektorimpulse zur Zeit T_D in Kanälen, die sich zeitlich nacheinander öffnen, registriert.

Während der Öffnungszeit des Rotors wird ein Lichtstrahl von einem auf der Rotorachse montierten Spiegel in einen Photovervielfacher reflektiert. Der Ausgangsimpuls startet den Flugzeitanalysator zur Zeit T_o. Die Differenz $T_D - T_o$ ergibt die zu messende Flugzeit t und in Verbindung mit L die Geschwindigkeit v bzw. die Energie E der Neutronen.

Die Spektrometeranordnung ist in Figur 2.1 schematisch dargestellt. Für die Pu-Messung ist der Detektor ersetzt durch eine Zählkammer, die aus dem Pu- und B-Target sowie dem Oberflächensperrschicht-Detektor besteht. Ein Targetwechsler bringt abwechselnd (ca.alle 2 Stunden) das Pu- und B-Target in die Zählposition. Ein Monitor sorgt für eine gleiche Neutronenbestrahlung beider Targets. Die Impulse der von dem Detektor jeweils gemessenen Spaltfragmente der $^{239}Pu(n, f)$-Reaktion und α-Teilchen der $^{10}B(n, \alpha)^7Li$-Reaktion werden auf den Flugzeitanalysator gegeben.
Die Impulse des Zählers werden nicht nur hinsichtlich ihrer zeitlichen Folge, sondern auch nach ihrer Impulshöhe von einem Impulshöhenanalysator sortiert.

Das Impulshöhenspektrum liefert Informationen über die Teilchendiskriminierung und ermöglicht, über eine Extrapolation zum Energienullpunkt die Zählverluste zu berechnen.

Die Zahl C_f der in einem Kanal des Flugzeitanalysators registrierten Spaltfragmente ist proportional der Zahl der einfallenden Neutronen $\phi(v)$, der Zahl der ^{239}Pu-Atome je Flächeneinheit N_{Pu}, der Nachweiswahrscheinlichkeit ε_f und dem Spaltquerschnitt σ_f:

$$C_f = \varepsilon_f \cdot N_{Pu} \cdot \sigma_f \cdot \phi(v) \qquad (2.1)$$

Die gleiche Relation gilt für die $^{10}B(n,\alpha)$-Reaktion:

$$C_\alpha = \varepsilon_\alpha \cdot N_B \cdot \sigma_B \cdot \phi(v) \qquad (2.2)$$

mit C_α = Zahl der α-Teilchen im Kanal n pro Messzyklus
ε_α = Nachweiswahrscheinlichkeit der α-Teilchen
N_B = Zahl der ^{10}B-Atome je 1 cm^2
σ_B = (n,α)-Reaktionsquerschnitt
$\phi(v)$ = Zahl der einfallenden Neutronen mit einer dem Kanal n entsprechenden Geschwindigkeit v pro Messzyklus

σ_B gehorcht dem 1/v-Gesetz für thermische Neutronen:

$$\sigma_B \cdot v = \sigma_B^o \cdot v_o \qquad (2.3)$$

mit $\sigma_B^o = \sigma_B$ bei der Geschwind. $v_o = 2200$ m/s.

Die Neutronenbestrahlung beider Targets ist gleich. Somit bestimmt (2.2) $\phi(v)$ und mit (2.3) lässt sich der Spaltquerschnitt berechnen:

$$\sigma_f = \frac{\varepsilon_\alpha}{\varepsilon_f} \cdot \frac{N_B}{N_{Pu}} \cdot \sigma_B^o \cdot \frac{v_o}{v} \cdot \frac{C_f}{C_\alpha} \qquad (2.4)$$

Beide Zählungen werden unter gleicher Geometrie ausgeführt. ε_α und ε_f unterscheiden sich nur dadurch, dass die Rückstreuung der α-Teilchen und der Spaltprodukte unterschiedlich ist und dass verschiedene Diskriminatoreinstellungen gewählt werden müssen.

Ein Vergleich zweier Reaktionsraten unter gleichen geometrischen Messbedingungen, sowie im gleichen Neutronenstrahl gemessen und mit identischen Targetunterlagen und -halterungen, minimalisieren die normalerweise anzubringenden Korrekturen, z. B. Effekte herrührend von der Auflösung, Rückstreuung der Neutronen.

Für den Standard-Wirkungsquerschnitt des Bors geben GUBERNATOR und MORET, 1968 den folgenden Wert an:

$$\sigma_B^o = 3835 \pm 5\ b(0,13\%) \qquad (2.5)$$

Er ist ein gewogenes Mittel der Messungen ausgeführt im ZBKM, Belgien (DERUYTTER et al., 1962, PROSDOCIMI und DERUYTTER 1963, DEBUS und DEBIEVRE 1967), in Risö, Dänemark (Als NIELSEN und DIETRICH, 1964) sowie die der Columbia Universität, N.Y., USA (SAFFORD et al. 1960), wobei als Fehler die einfache Standardabweichung angenommen wurde.

3. Targetherstellung und Absolutzählung der Atome

3.1 Pu-Target

Die Reichweite der Spaltfragmente im Pu-Target ist sehr kurz ($R \approx 10\ \mu m$). Schichtdicken von nur $0,1\ \mu m$ gewährleisten wegen geringer Selbstabsorption eine gute Energieauflösung. Kleine Probendicken aber erfordern grössere Oberflächen, um ausreichende Zählraten zu erhalten.
Da die Unebenheiten einer Oberfläche in der Grössenordnung von $0,1\ \mu m$ liegen, ist es schwierig, homogene Targets herzustellen. Eine gute Homogenität garantiert eine gleichmässige Zählgeometrie. Von den vielen Präparationsmethoden ergibt die Aufdampfmethode im Ultrahochvakuum bezüglich der Homogenität die besten Resultate.

Nachteil der Aufdampfmethode ist die Notwendigkeit einer grösseren Ausgangsmenge sowie die radioaktive Verunreinigung der Aufdampfanlage durch die starke α-Radioaktivität vom ^{239}Pu.

Vorgezogen wird deshalb die Methode des Elektrosprühens nach CARSWELL und MILSTEAD, 1957.

Unter einer Spannung von einigen kV werden die aus einer Kapillare kommenden Tröpfchen mit in Methylalkohol gelöstem Plutoniumazetat auf eine goldüberzogene Quarzscheibe gesprüht.
Die Kapillare bewegt sich zyklisch über die Targetunterlage und baut verschiedene Schichten auf. Die kleinere Inhomogenität, verursacht durch die höhere elektrische Feldstärke am Rand des die Targetoberfläche begrenzenden Diaphragmas (sog. Randeffekt), wird bei der Fehlerberechnung des Geometriefaktors berücksichtigt.
Die Abmessungen des Targets sind folgende: Durchmesser der Au-Quarzscheibe (Au = 40 $\mu g/cm^2$) 60 mm, Durchmesser der Pu-Azetatschicht 38 mm, Dicke der Unterlage 0,65 mm und Dicke der Pu-Azetatschicht kleiner als 0,1 μm.

Die im Oak Ridge National Laboratory gemessene Isotopenhäufigkeit ergab die in Tabelle 3.1 aufgeführten Resultate.

Tab. 3.1: Isotopenhäufigkeit des Pu-Targets Tp 442-3
(Kennzeichnung durch ZBKM)

Isotop	relative Häufigkeit (%)
^{239}Pu	99,979
^{240}Pu	0,02
^{241}Pu	0,001

Das Gewicht bzw. die Anzahl der ^{239}Pu-Atome wird durch eine α-Absolutzählung bestimmt. Die Genauigkeit dieser Methode hängt primär von der Kenntnis der spezifischen Aktivität A_s bzw. der Halbwertszeit $T_{1/2}$ ab. Die Berechnung der spezifischen Aktivität

aus den Halbwertszeiten und den Häufigkeiten der drei α-radioaktiven Pu-Isotope wird im Anhang 7 angegeben. Die Isotope ^{240}Pu und ^{241}Pu spielen dabei wegen ihrer kleineren Häufigkeit eine untergeordnete Rolle.

Eine Zusammenfassung der gemessenen α-Halbwertszeiten der drei Pu-Isotope zeigen Tabelle 3.2 und 3.3.

Die nach der kalorimetrischen Methode gefundenen Halbwertszeiten von ^{239}Pu liegen um 1,2 - 1,3% niedriger als die durch eine α-Absolutzählung und eine präzise Gewichtsmessung bestimmten. Bisher gibt es keine schlüssigen Erklärungen für diese Differenz. Frühere Messungen an ^{233}U und ^{241}Am lassen eine gleiche Diskrepanz erkennen.

Die in den beiden Tabellen angegebenen, gewogenen Mittel der nach der Methode der α-Zählung erhaltenen Halbwertszeiten werden zur Berechnung der spezifischen Aktivität (A7) benutzt, da die Pu-Masse ebenfalls über eine γ-Zählung bestimmt wird. Wegen der Unterschiede ist momentan im ZBKM eine Neuvermessung der spezifischen α-Aktivität von ^{239}Pu im Gange.

Ein Halbleiterdetektor (Au-Si) zählt die α-Teilchen der Pu-Probe unter zwei bekannten, aber kleinen effektiven Raumwinkeln. Aus einer Extrapolation des von der Diskriminatorschwelle an registrierten α-Impulshöhenspektrums zum Energienullpunkt werden die Zählverluste korrigiert. Mit Ge(Li)-Detektoren gemessene γ-Spektren geben Aufschlüsse über eventuelle Verunreinigungen anderer α-Strahler. Tabelle 3.4 gibt einen Überblick der Ergebnisse der α-Absolutzählung und deren Fehler.

Tab. 3.2: α-Halbwertszeiten von ^{239}Pu

Autoren, Methode	$T_{1/2}$ (a)
α-Zählung	
Werte mit grösserem Fehler:	
Canningham und Werner 1949	24 300 ± 370
Farwell et al., 1954	24 400 ± 500
Werte für den Mittelwert:	
Westrum, 1949	24 400 ± 70
Wallman, 1951	24 360 ± < 100
Dokuchaev, 1960	24 390 ± 30
Markin, 1959	24 413 ± 30
Ihle et al., 1966	24 350 ± 63
gew. Mittel (Fehler = dreifache Standardabw.)	24 395 ± 29
kalorimetr. Methode	
Stout und Jones, 1945	24 110 ± 240
Oetting, 1971	24 065 ± 50

Tab. 3.3: α-Halbwertszeiten von $^{240,241}Pu$

Autoren, Methode	$T_{1/2}$ (a)
^{240}Pu	
α-Zählung	
Westrum, 1951	6240 ± 120
Inghram et al., 1951	6580 ± 40
Farwell, 1954	6300 ± 600
Butler et al. 1956	6600 ± 100
Dokuchaev, 1960	6620 ± 50
gew. Mittel	6575 ± 43
kalorimetr. Methode:	
Oetting, 1967	6524 ± 10
^{241}Pu	
IAEA (Hanna et al., 1969)	14,5 ± 0,4

Tab. 3.4: Bestimmung der ^{239}Pu-Masse des Präparats Tp442-3

Geometriefaktor G:	1812,66	641,792
Korrekturfaktor für Totzeit K_T:	1,00519	1,01466
für Zählverlust K_v:	1,00086	1,00086
(Extrap. zum Energienullp., Streu.)		
Verhältnis Nulleffekt B zur direk. α-Zählr. N:	0,016%	0,007%
Absolute Zählrate $N_A = G.K_T.K_v(N-B)$:	2294 000 s^{-1}	
^{239}Pu-Masse $M_{^{239}Pu} = 0,99979 . N_A/A_s =$ (A$_s$: siehe A7)	1010,48 µg	
Targetoberfläche:	11,341 cm^2	
Flächendichte:	89,100 µg/cm^2	
Fehlerursachen	**Fehler δ_i (%)**	
Geometriefaktor	0,04	
Totzeit	0,02	
Zählverlust	0,10	
Zählrate (stat.)	0,01	
Nulleffekt (stat.)	< 0,01	
Verunreinigungen	< 0,03	
$T_{1/2}(^{239}Pu)$ (Tab. 3.2)	0,12	
Totaler Fehler $= \sqrt{\Sigma \delta_i^2} =$	0,16	

3.2 B-Target

Die Bor-Targets werden durch Aufdampfen von dünnen Borschichten auf goldüberzogenen Quarzscheiben im ZBKM hergestellt. Die Unterlagen haben die gleiche Zusammensetzung, Grösse und Dicke wie das Pu-Target (Tp 442-3). Gleichzeitig werden neben der eigentlichen B-Schicht andere Prüfschichten auf kleineren Unterlagen aufgedampft. Diese dienen zur Untersuchung des ^{10}B- und ^{11}B-Gehaltes und der Verunreinigungen. Geringe metallische Verunreinigungen können spektral-analytisch festgestellt werden. Der Anteil des Kohlenstoffes in der Prüfschicht wird zu Kohlendioxyd verbrannt und anschliessend gaschromatographisch nachgewiesen. Die aufgedampfte Masse wird durch Wägung der Quarzscheiben ohne und mit dem Aufdampfungsgut im Vakuum der Aufdampfungsanlage gemessen.

Der atomare ^{10}B-Gehalt des Ausgangsmateriales beträgt $19,824 \pm 0,020\%$. Messungen an den aufgedampften Prüfschichten ergeben einen um 1 - 3% höheren ^{10}B-Gehalt. Als Folge dieses noch nicht vollständig verstandenen Unterschieds muss jedes nach dieser Präparationsmethode hergestellte Target einzeln hinsichtlich der Isotopenzusammenstellung untersucht werden.

In Tabelle 3.5 sind die Resultate der verschiedenen Messungen (Wägung, Verunreinigung und massenspektrometrische Isotopenanalyse) von 4 Targets (B73, B74, B64, B69) zusammengestellt. Die kleine Oberflächenvergrösserung gegenüber dem Pu-Target, bedingt durch die Erwärmung des die aufgedampfte Schicht begrenzenden Diaphragmas, wird bei der Berechnung des Geometriefaktors im Anhang 10 berücksichtigt.

Nach der Formel (2.2) besteht zwischen der α-Zählrate und der Anzahl der B-Atome bzw. der B-Masse ein linearer Zusammenhang. Daher können die 4 Targets bei gleicher Neutronenbestrahlung miteinander gut verglichen werden.

Tab. 3.5: Charakteristiken der 4 Bortargets

Grössen	B73	B74	B64	B69
Totale Masse (μg)	412,6	525,0	787,2	493,8
Fehler (μg)	2	2	2	2
metall. Verunreinig. (μg)	0,91	1,14	3,05	0,49
Fehler (%)	15	15	20	20
Kohlenstoffverun. (μg)	0,44	0,76	0,86	1,23
Fehler (%)	20	20	20	20
Bor-Masse M_B (μg)	411,2	523,1	783,3	492,1
Fehler von M_B (%)	0,45	0,45	0,35	0,48
Targetoberfl. O (cm^2)	11,357	11,360	11,454	11,453
Fehler von O (%)	0,05	0,05	0,05	0,05
M_B/O ($\mu g/cm^2$)	36,21	46,05	68,39	42,97
Fehler von M_B/O (%)	0,50	0,50	0,40	0,53
Atomarer Gehalt an ^{10}B (%)	20,450	20,330	20,127	20,228
Massen Gehalt an ^{10}B (%)	18,950	18,837	18,647	18,740
Fehler (%)	0,32	0,32	0,23	0,23
^{10}B-Masse $M_{^{10}B}$ (μg)	77,922	98,536	146,06	92,220
Fehler von $M_{^{10}B}$ (%)	0,55	0,55	0,41	0,53
$M_{^{10}B}/O$ ($\mu g/cm^2$)	6,861	8,674	12,752	8,052
Fehler von $M_{^{10}B}/O$ (%)	0,55	0,55	0,42	0,53

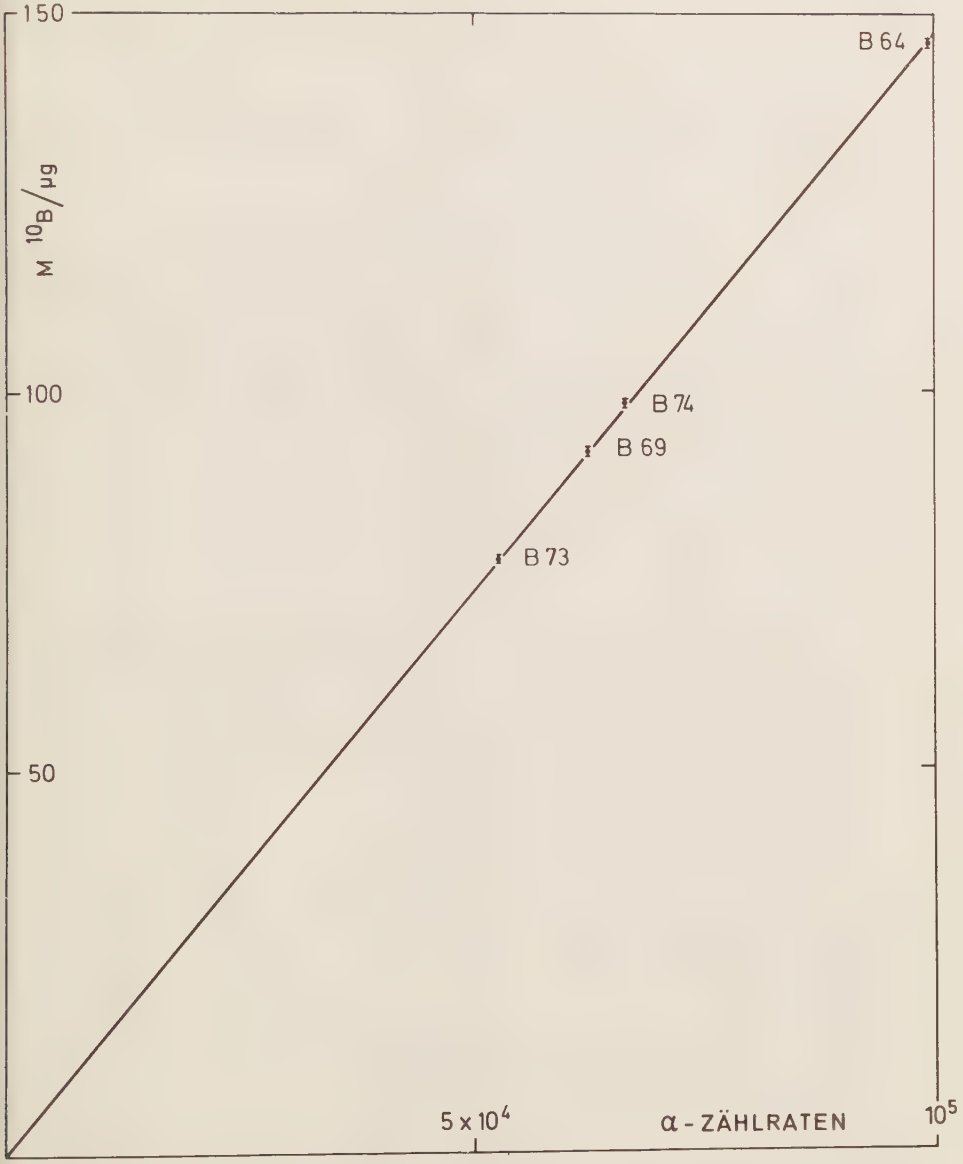

Fig. 3.1 VERGLEICH VON ^{10}B - MASSEN UND α - ZÄHLRATEN

Die durch den Nullpunkt gehende Ausgleichsgerade in Fig. 3.1 durchläuft die Messwerte innerhalb der Fehlergrenzen. Die numerischen Ergebnisse gibt die folgende Tabelle.

Tabelle 3.6: Vergleich von ^{10}B-Massen und α-Zählraten

Target Nr.	^{10}B-Masse(/ug) (Tab. 3.5)	α-Zählrate (58 Messungen)	^{10}B-Masse (/ug) (Ausgleichsgerade)
B64	146,06 ± 0,60	99 179 ± 55	146,35 ± 0,37
B69	92,22 ± 0,49	62 299 ± 36	91,93 ± 0,23
B74	98,54 ± 0,54	67 194 ± 40	99,15 ± 0,25
B73	77,92 ± 0,43	53 537 ± 40	77,53 ± 0,20

Das schwerste Target (B64) wird zur Messung der ^{239}Pu-Spaltquerschnitte aus Gründen besserer Zählstatistik gewählt. Die Schichtdicke dieses Targets beträgt 0,29 /um, die Reichweite der zu zählenden α-Teilchen mit einer Energie von 1,5 MeV im Bormaterial 3,5 /um. Demnach ist nur ein kleiner Verlust durch Selbstabsorption zu erwarten.

4. Experimenteller Aufbau

4.1. Chopper

Das mit einem mechanischen Unterbrecher (Rotor) arbeitende Flugzeitspektrometer besteht aus folgenden Teilen:

a) Neutronenkollimator
b) Rotor
c) Flugweg
d) Neutronendetektor
e) Flugzeitanalysator

Die Kombination Neutronenkollimator-Rotor wird allgemein als Chopper bezeichnet (Fig. 4.1).

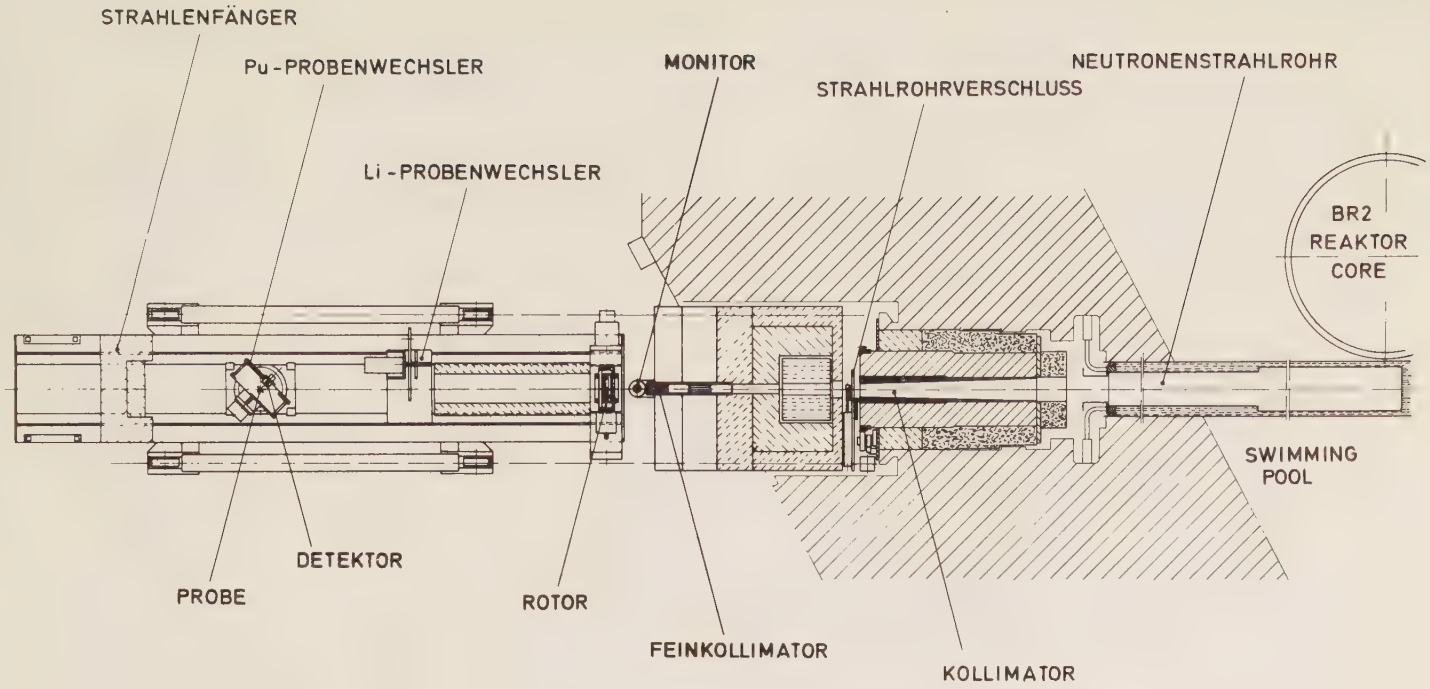

Fig. 4.1 BR2 . CHOPPER

Während der Plutoniummessung befindet sich der Li-Probenwechsler ausserhalb des Neutronenstrahles.

Die aus dem Reaktorkern kommenden Neutronen werden in dem an der Stirnfläche des Neutronenstrahlrohres befindlichen Wasser moderiert und die in Richtung des Choppers gestreuten Neutronen durchfliegen ein 3 m langes mit Wasser umspültes Aluminiumrohr, das tangential am Reaktorkern installiert ist. Sie passieren einen konischen Kollimator (Borax und Paraffin), dessen Öffnungsdurchmesser sich von 13 cm auf 8 cm verringert. Anstelle dieses Kollimators ist es auch möglich, einen kleineren Kollimator der Öffnungsfläche 1 x 1 cm^2 in den Neutronenstrahl zu drehen. Als weiterer folgt der 75 cm lange Feinkollimator mit einem zylindrischen Innendurchmesser von 5 cm. Zwei Pakete kadmierter Inoxplatten (Dicke 0, 5 mm, Abstand 5 mm) im Inneren garantieren eine geringe Divergenz des durchgelassenen Neutronenstrahles.

Der Rotor (Fig. 4. 2) besteht aus ungefähr 50 dicht aufeinandergestapelten kadmierten Aluminiumplatten (Al-Dicke 1 mm, Cd-Dicke 0, 1 mm). Kadmium ist für thermische Neutronen unterhalb 0, 3 - 0, 4 eV ein starker Absorber, dagegen ist Aluminium für Neutronen relativ durchlässig, d. h. bei paralleler Stellung der Kadmium - bzw. Aluminiumplatten mit dem Neutronenstrahl ist der Rotor maximal geöffnet. Der Rotor liefert pro Umdrehung zwei Neutronenimpulse. Seine Drehfrequenz beträgt ca. 40 s^{-1}. Im Anhang 8 werden die Charakteristiken des Rotors wie die Impulsform und die Durchlässigkeit angegeben.

4.2. Zählkammer

Die Zählkammer (Fig. 4. 3) ist ein zylindrischer, evakuierter (10^{-2} Torr) Aluminiumbehälter mit dem Targetwechsler und dem Detektor in seinem Inneren. Sie steht am Ende des 2 m langen Flugweges (Fig. 4. 1). Die Rückstreuung der Neutronen kann durch die Verwendung dünner Ein- und Ausgangsfenster (1 mm) klein gemacht werden.

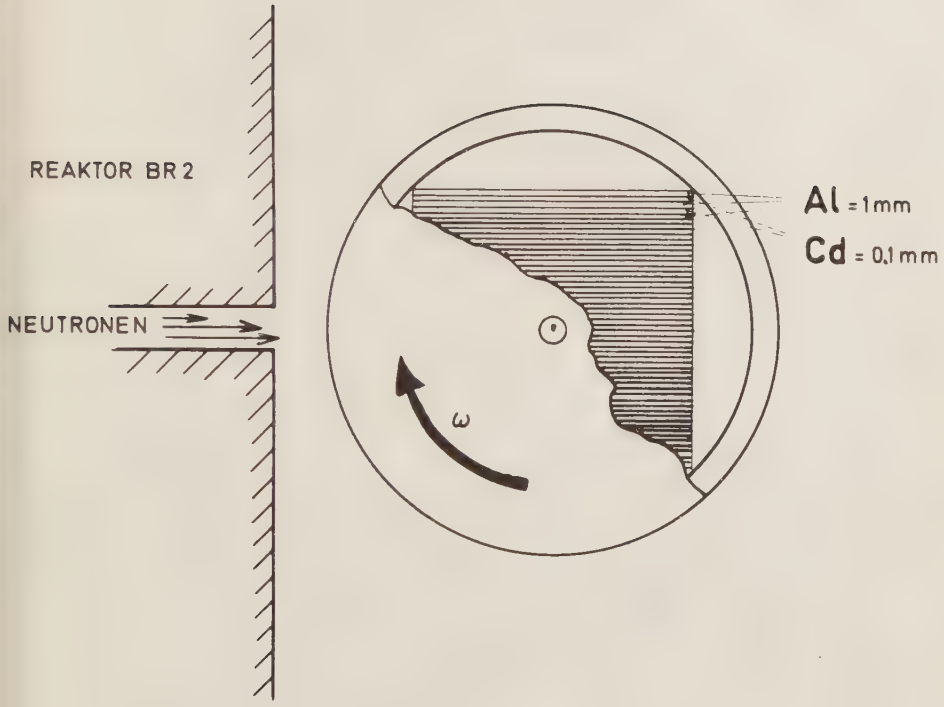

Fig. 4.2 Rotor

Fig. 4 4 DETEKTOR MIT KOLLIMATOR

Der Detektor (Fig. 4.4) ist senkrecht, axialsymmetrisch und im Abstand von 3,45 cm gegenüber dem im Neutronenstrahl befindlichen Target befestigt und befindet sich ausserhalb des Neutronenstrahles (Fig. 4.5). Der durch Aufdampfen von Gold auf Silizium hergestellte Oberflächensperrschichtdetektor besitzt eine Zählfläche von ca. 6 cm^2.

Für den Detektor steht eine Auswahl von Messingblenden verschiedener Öffnungsdurchmesser zur Verfügung. Für kleinere Blenden ist die Anzahl der aufgestockten (Pile-up) Impulse des α - Strahlers Pu, die die Absolutzählung der Spaltfragmente erschweren, gering, aber auch die Anzahl der registrierten Spaltfragmente, was eine Verlängerung der Messzeit bedeutet. Bei zu langen Messzeiten (mehrere Monate bis zu einem Jahr) können sich systematische Fehler durch Unstabilitäten der Messapparatur ergeben. Die grössere Anzahl der Pile-up Impulse sowie der registrierten Spaltfragmente bei Verwendung grösserer Blenden hat dagegen zur Folge, dass sich das Pile-up Spektrum mit dem der Spaltfragmente überschneidet.

Das Verhältnis $N_\alpha(m)/N_f$ ist ein Mass für den Einfluss des α-Pile-up Spektrums bei der Registrierung der Spaltfragmente. $N_\alpha(m)$ bedeutet die Zahl der m-fach aufgestockten α-Impulse je Zeiteinheit und N_f die totale Zahl der Spaltfragmente je Zeiteinheit. Mit der Impulshöhe P eines verstärkten Detektorimpulses eines α-Teilchens beträgt die Impulshöhe eines m-fach aufgestockten α-Impulses m. P. Im Anhang 9 wird $N_\alpha(m)/N_f$ in Abhängigkeit von dem Durchmesser der Detektorblende mit der einfachen Annahme rechteckiger Impulse berechnet. An Hand der Tabelle A9 wird die Blende mit dem Radius a = 9.990 mm für die Messung ausgewählt. Der Beitrag der Impulse $N_\alpha(5)$ mit einer Impulshöhe von 5. P zum Spektrum der Spaltfragmente ist nur $N_\alpha(5)/N_f = 0,1\%$. Experimentell sind nur die zwei Pile-up Piks $C_\alpha(2)$ und $C_\alpha(3)$ zu sehen(Fig. 4.6).

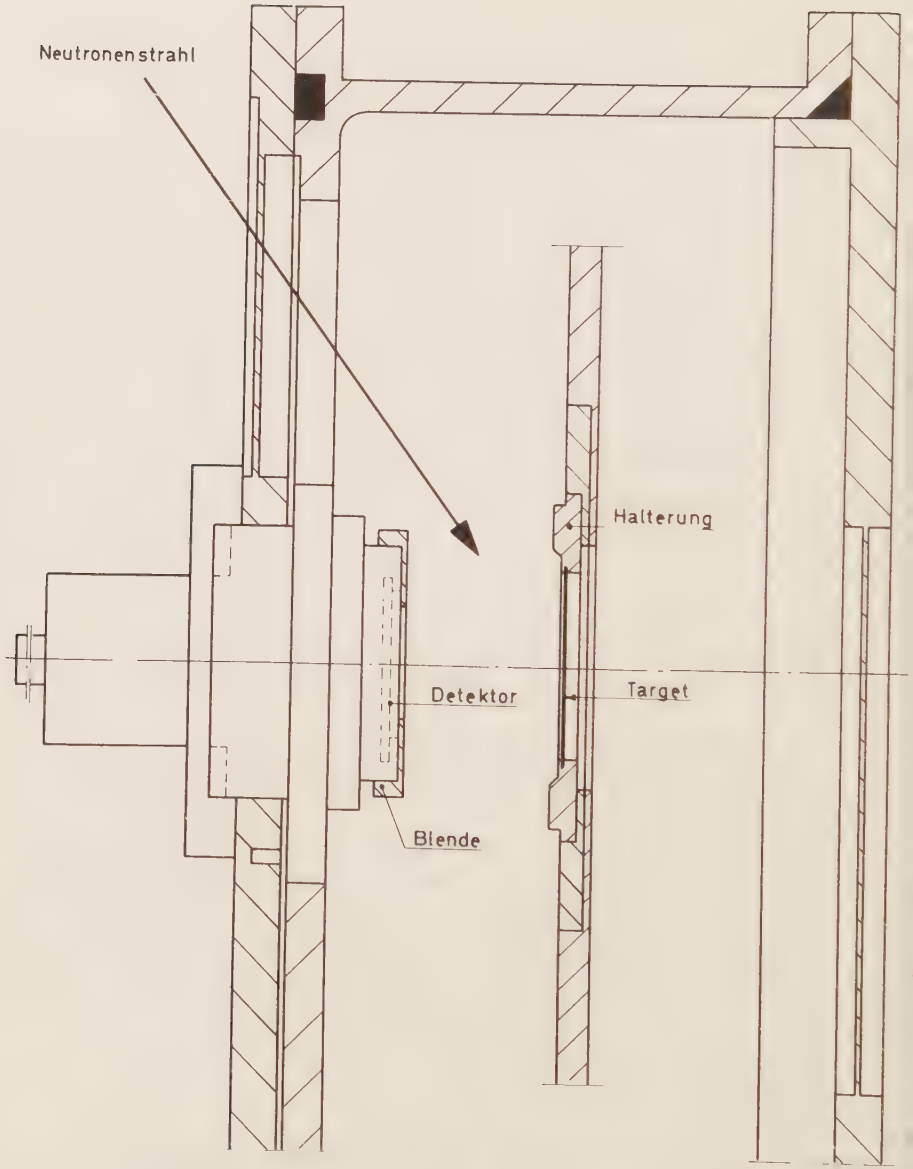

Fig. 4.5 Querschnitt der Zählkammer

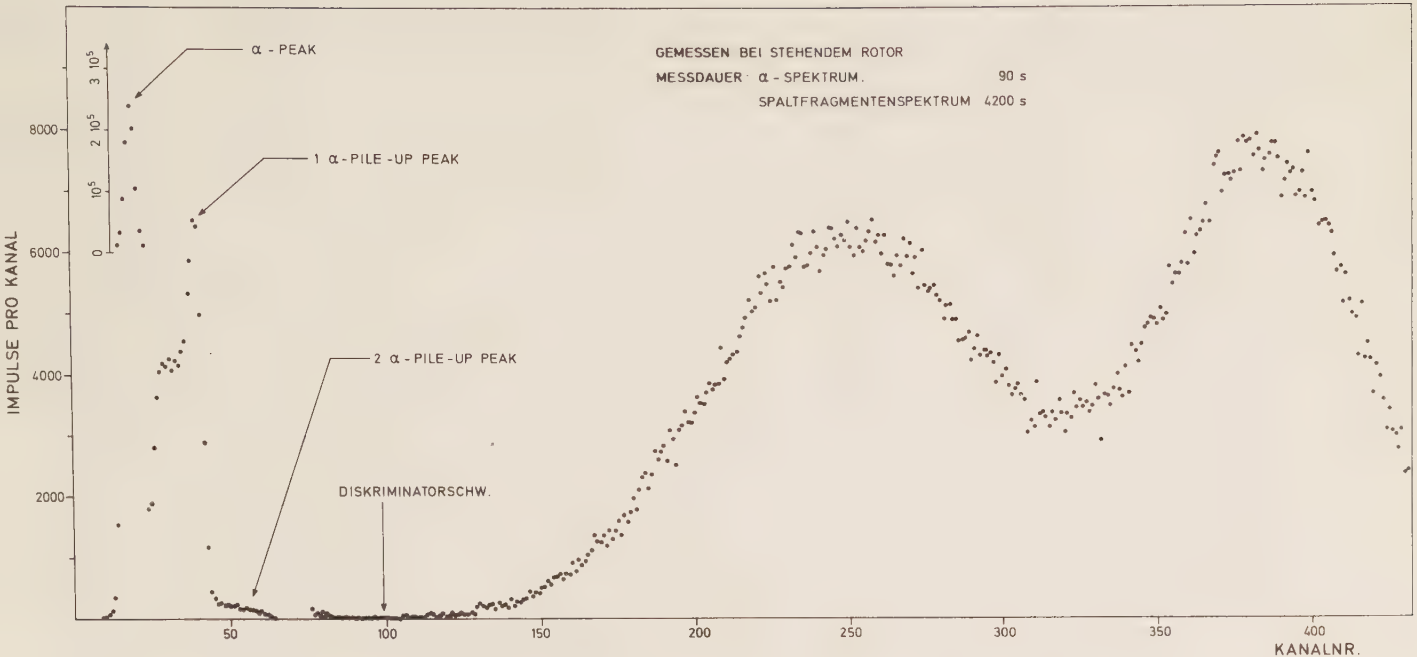

Fig. 4.6 α - PILE - UP SPEKTRUM UND SPALTFRAGMENTENSPEKTRUM

Ausserdem beträgt die Impulshöhe der 3-fach aufgestockten Impulse nicht 3. P, sondern etwa 2, 4 P. Diese Diskrepanz ist auf die als rechteckig angenommene Impulsform zurückzuführen. Eine Schwellenwerteinstellung des Diskriminators bei ca. 25 MeV ermöglicht somit eine gute Trennung der 5 MeV α-Teilchen, einschliesslich C_α (2) und C_α (3),von den schweren und leichten Spaltfragmenten mit den mittleren Energien von 65 bzw. 95 MeV. Der Anteil niederenergetischer Spaltfragmente, die bei dieser Diskriminatorstellung nicht registriert werden,ist gering (Abschn. 5. 2).

Der im ZBKM hergestellte Detektor hat seine optimale Auflösung (gemessen am α-Spektrum des ^{241}Am) etwa bei der Detektorspannung 200 V. Dies entspricht einer Sperrschichttiefe von 170 /um. Das Arbeiten bei einer so grossen Sperrschichttiefe würde den Untergrund des α-Spektrums der $^{10}B(n,\alpha)^7Li$-Reaktion erheblich erhöhen. Pile-up Impulse der β - und γ-Strahlung der aktivierten Goldunterlage des Bortargets und die p- und α-Teilchen der $^{27}Al(n, p)^{27}Mg$ - und $^{27}Al(n, \alpha)^{24}Na$-Reaktionen der Aluminiumhalterung des Targets mit dem Neutronenstrahl verursachen diesen Untergrund. Die letzten beiden Reaktionen können grösstenteils durch Abschirmung der Al-Halterung mit einem Borax-Harz-Gemisch und einer Cd-Blende ausgeschaltet werden. Die Pile-up Impulse der β (Reichweite im Si ca 1 mm) und γ-Strahlung lassen sich durch Verringerung der Sperrschichttiefe vermindern. Als günstiger Arbeitsspannungsbereich ergibt sich 20 bis 50 V.

Neutronen, die das Target und die Unterlage ohne Kernumwandlung durchsetzen, können von der Rückwand der Zählkammer zum Target zurückgestreut werden (siehe dazu Fig. 4. 5). Dies hat bei einer anschliessenden Reaktion mit einem Targetkern zur Folge, dass das Neutron einem seiner Flugzeit nicht entsprechenden Zeitkanal zugeordnet wird. Dieser Effekt ist jedoch für die Bestimmung des Spaltquerschnitts vernachlässigbar, denn

1. ist die Anzahl der zurückgestreuten Neutronen in etwa für beide Messungen (Pu- oder B-Target in Zählposition) gleich und

2. streuen nur weniger als 1% der Neutronen an der 1 mm dünnen Al-Rückwand und der Geometriefaktor (bestrahlte Rückwand-Target mit Abstand ca. 10 cm) ist bei weitem kleiner als 10^{-3}.

4.3. Elektronik und Messverfahren

Die Signale des Detektors werden einem ladungsempfindlichen Vorverstärker zugeleitet (Fig. 4.7). Nach einer linearen Hauptverstärkung mit der Differentations- und Integrationszeitkonstante von 1 µs gelangen die Impulse zum Eingang eines 512-Kanal-Impulshöhenanalysators. Ist das Pu-Target in Zählposition, werden die Spaltfragmentimpulse abgeschwächt (Imp.-Verschw.), um sie dem begrenzten Eingangsbereich des Impulshöhenanalysator anzupassen. Ausserdem sind die beiden Eingangsdiskriminatoren so eingestellt, dass das α- und das Pile-up Spektrum des Plutoniums (s. Abschn. 4.2) und das ^{7}Li-Spektrum der ^{10}B-Reaktion nicht mitregistriert werden. Nur die über die Diskriminatorschwelle gelangten Impulse werden auch gleichzeitig einem 100-Kanalflugzeitanalysator mit einer eingestellten Kanalbreite von 32 µs zugeführt.

Nach Erreichen der Impulsvorwahl von 990 000 stoppt der die Neutronenstromdichte messende Monitor, bestehend aus einer ^{235}U-Schicht und einem Halbleiter detektor (Zählrate der Spaltfragmente ca. 300 s^{-1}), die Messung des sich in Zählposition befindenen Targets. Anschliessend wird die Targetnummer, die Messzeit, das Impulshöhen- und Flugzeitspektrum und die Anzahl

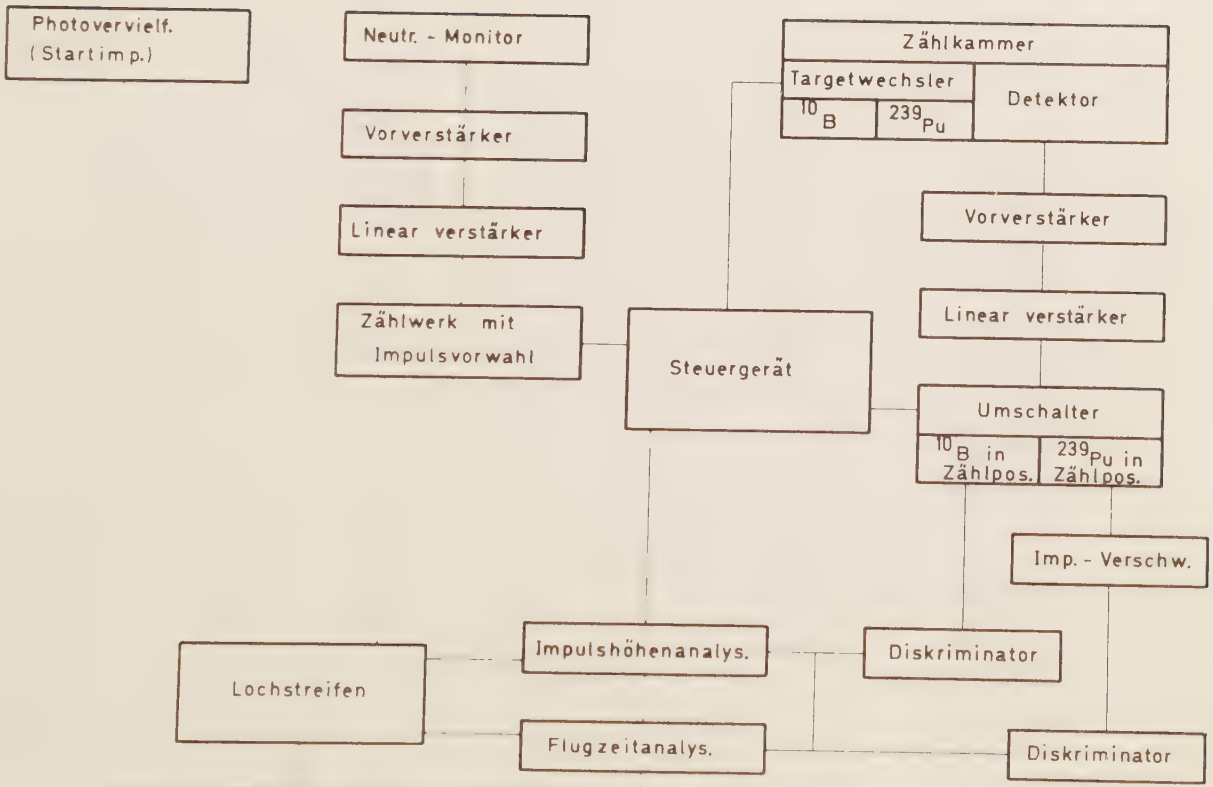

Fig. 4.7 Gesamtblockbild der Schaltung

der Photomultiplierimpulse (Startimpulse T_o für den Flugzeitanalysator; je Rotorumdrehung zwei Startimpulse) auf Lochstreifen ausgelesen. Danach dreht der Wechsler das folgende Target in Zählposition und die Messung startet von Neuem. Der ganze Zyklus läuft automatisch.

Aus der Zahl der Startimpulse und der Messzeit lässt sich die Rotorfrequenz angeben. Die Stabilität der Rotorfrequenz muss von Messung zu Messung kontrolliert werden, da sich der Monitor im Neutronenstrahl vor dem Rotor befindet und die Neutronenstromdichte des gepulsten Neutronenstrahles von der Rotorfrequenz (A8) abhängig ist.

Neutronen, die den Rotor bei geschlossener Stellung durchfliegen, also nicht von Kadmium absorbiert werden, und die aus der Experimentierhalle kommenden "Raumneutronen" bilden den Untergrund. Der Anteil der Raumneutronen ist kaum messbar und der der nichtgepulsten beträgt etwa 7%. Zur Bestimmung des Untergrundes werden Messungen mit einem 0, 5 mm starken Cd-Blech im Neutronenstrahl durchgeführt. Die Neutronen, die den Rotor unabhängig von seiner Stellung passieren, werden auch nicht vom Cd-Blech absorbiert.

5. Auswertverfahren

5. 1. Aufbereitung der Messdaten C_f und C_α

Figuren 5. 1 bis 5. 8 zeigen die verschiedenen Spektren einer Messung am Pu- und B-Target . Jedes Spektrum wird insgesamt 135 mal registriert, die Untergrundspektren dagegen nur 34 mal.

Die Form des Flugzeitspektrums der Untergrundmessung lässt sich dadurch erklären, dass einer Vergrösserung der effektiven Dicke des Kadmiums im Rotor relativ zur Richtung des Neutronenstrahles einer Abnahme des Spektrums mit zunehmender Flugzeit entspricht.

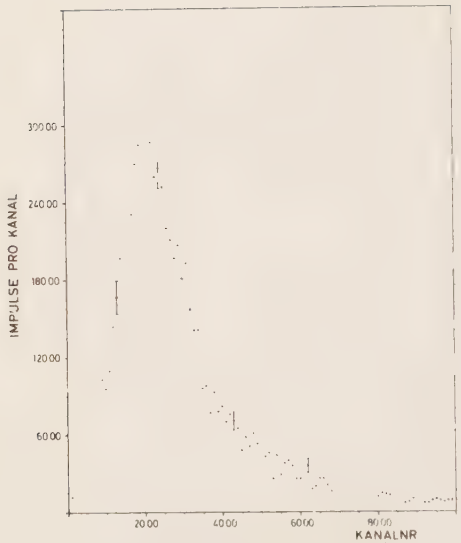

Fig 5.1 GEMESSENES FLUGZEITSPEKTRUM (^{239}Pu)

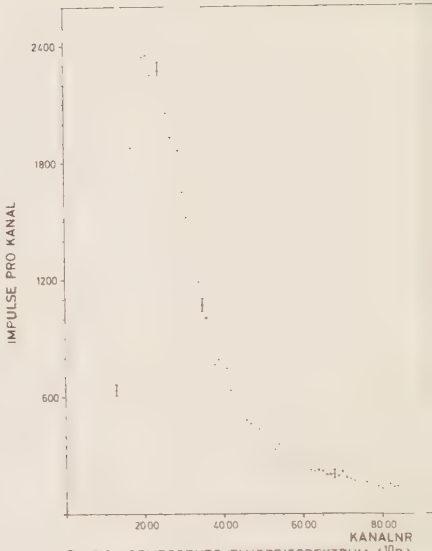

Fig 5.2 GEMESSENES FLUGZEITSPEKTRUM (^{10}B)

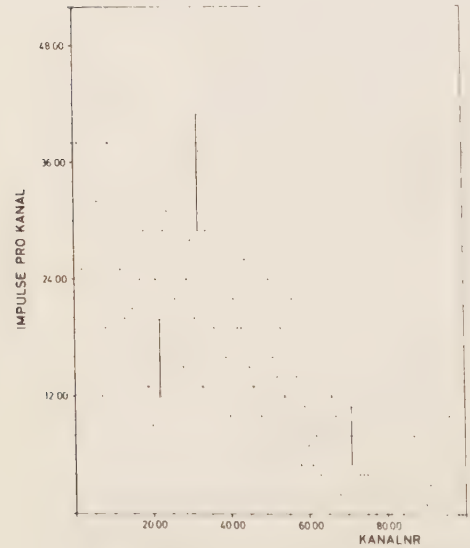

Fig 5.5 GEMESSENES FLUGZEITSPEKTRUM (UNTERGRUND VON ^{239}Pu)

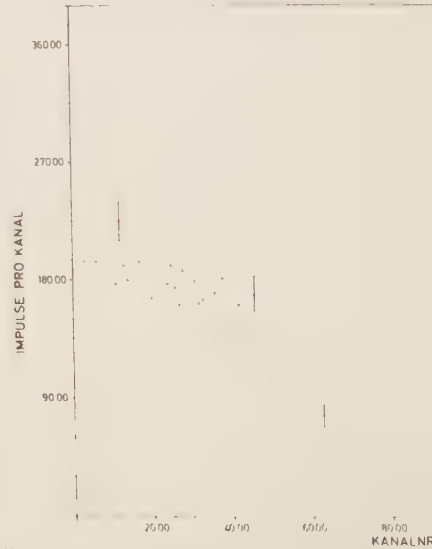

Fig 5.6 GEMESSENES FLUGZEITSPEKTRUM (UNTERS

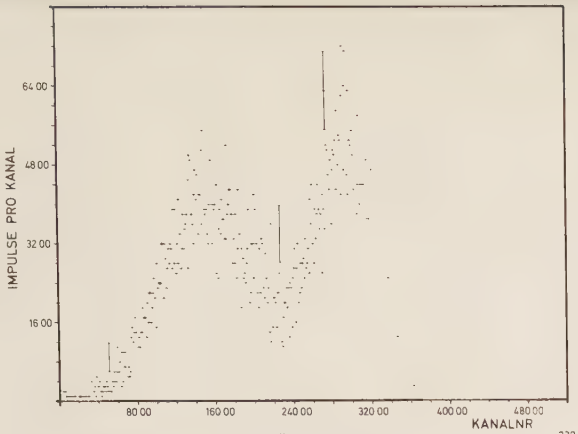

Fig. 5.3 GEMESSENES IMPULSHÖHENSPEKTRUM DER SPALTFRAGMENTE (^{239}Pu)

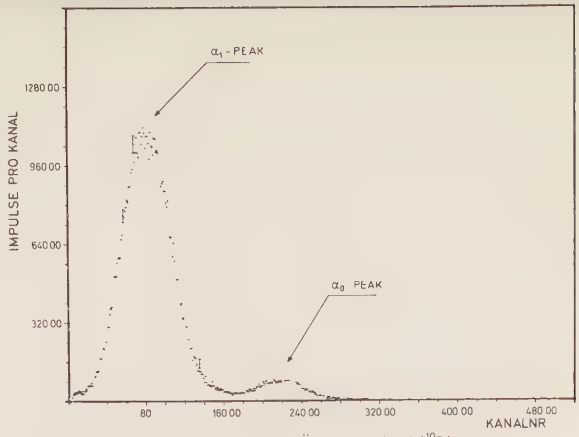

Fig. 5 4 GEMESSENES α - IMPULSHÖHENSPEKTRUM (^{10}B)

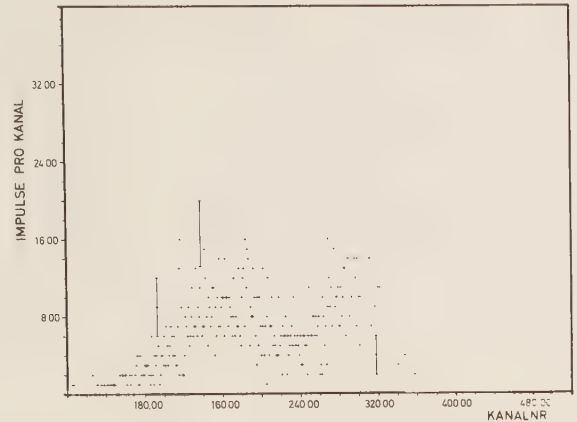

Fig. 5.7 GEMESSENES IMPULSHÖHENSPEKTRUM (UNTERGRUND VON ^{239}Pu)

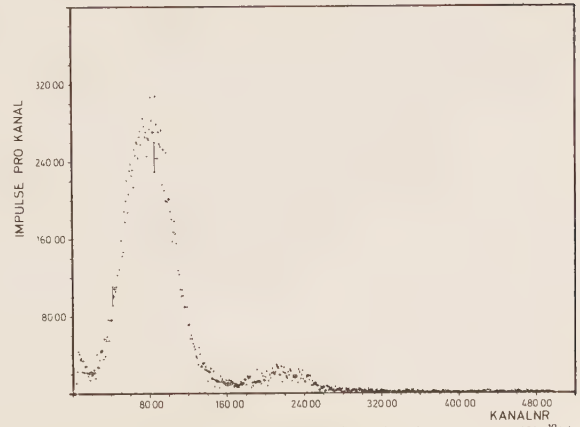

Fig 5 8 GEMESSENES α - IMPULSHOHENSPEKTRUM (UNTERGRUND VON ^{10}B)

Die beiden Piks im α-Impulshöhenspektrums der Fig. 5.4 und 5.8 zeigen die Verteilung der α-Teilchen der beiden Reaktionen $^{10}B(n, \alpha_o)^7Li$ und $^{10}B(n, \alpha_1)^7Li^*$.

Die gepulste Neutronenstromdichte ist abhängig von der Rotorfrequenz (A8). Die Rotorfrequenz ist sehr stabil, sodass der Unterschied in der gesamten Neutronenbestrahlung des Pu- und B-Targets nur 0,005% ausmacht. Die jeweiligen Spektren können somit Kanal für Kanal überlagert werden.

Die Totzeitkorrektur der überlagerten Flugzeitspektren erfolgt mit Hilfe der im Anhang A1 hergeleiteten Totzeitkorrekturformel:

$$C_n = \frac{C_n^o}{1 - \Delta t_T \cdot C_{n-m/2}^o \cdot f. T. \Delta t_A} \qquad (5.1)$$

mit

C_n^o = unkorr. Inhalt des Flugzeitkanales n

$\Delta t_T = \sum_{k=1}^{512} I_k \Delta t_k / \sum_{k=1}^{512} I_k$ = mittlere Totzeit, I_k = Inhalt des Impulshöhenkanales k, Δt_k = Zeitdifferenz eines Signales zwischen dem Eingang und dem Einschreiben in den Impulshöhenkanal k

f = Rotorfrequenz

T = Messdauer

Δt_A = Kanalbreite des Flugzeitanalysators

m = $\Delta t_T / \Delta t_A$

Die grössere der Totzeiten ist die des Impulshöhenanalysators. Während der Zeit des Umsetzens im ADC-Teil und dem Einschreiben in den Speicher des Impulshöhenanalysators gelangt jedoch auch kein Impuls zum Flugzeitanalysator. Der Einfluss der Totzeit auf den 2200 m/s-Spaltquerschnitt beträgt etwa 0,9 %.

Eine Korrektur bezüglich der endlichen Auflösungsfunktion des Flugzeitspektrometers wird nicht durchgeführt. Der im Anhang 6 berechnete Einfluss der Auflösungsfunktion ist kleiner als 0,05% und wird nur bei der Fehlerberechnung berücksichtigt.

Die in einer geringeren Anzahl gemessenen Untergrundspektren (Nulleffekt) werden wegen ihres hohen statistischen Fehlers mit mathematischen Kurven angepasst (Fig. 5.9 ^{10}B und 5.10 ^{239}Pu), danach auf die Anzahl der direkt gemessenen Spektren normiert und von ihnen abgezogen (Fig. 5.11). Der Untergrund der Flugzeitspektren kann mit einer Parabel, derjenige der Impulshöhenspektren mit einer Parabel und - hauptsächlich in der Umgebung der Piks - mit einer sinusförmigen und einer linearen Gleichung angepasst werden:

$$C_j^n = \sum_{k=1}^{T_e} A_k \sin\left(\frac{k\pi}{N} j\right) + A + B_j \qquad (5.2)$$

$$0 < j \leq N$$

mit

$N = B_{1e} - B_{oe}$

$n = B_{oe} + j$

T_e = Anzahl der Koeffizienten A_k des Intervalles e

B_{oe} bzw. B_{1e} = Beginn - bzw. Endpunkt des Intervalles e.

n = Index für die Kanalnr. des gemessenen Spektrums C_n^n

A, B = Konstanten der die Punkte $(C^n_{B_{oe}}, B_{oe})$, $(C^n_{B_{1e}}, B_{1e})$ schneidenden Gerade $A+B.j$

Neben den mit dem Untergrund korrigierten Impulshöhenspektren zeigen die Figuren 5.12 und 5.13 als Vergleich korrigierte Spektren von Targets mit kleineren Massen. Die Masse des Targets Tp442-1 gegenüber Tp442-3 ist etwa um den Faktor 4 kleiner und B74 gegenüber B64 etwa um den Faktor 1,5.

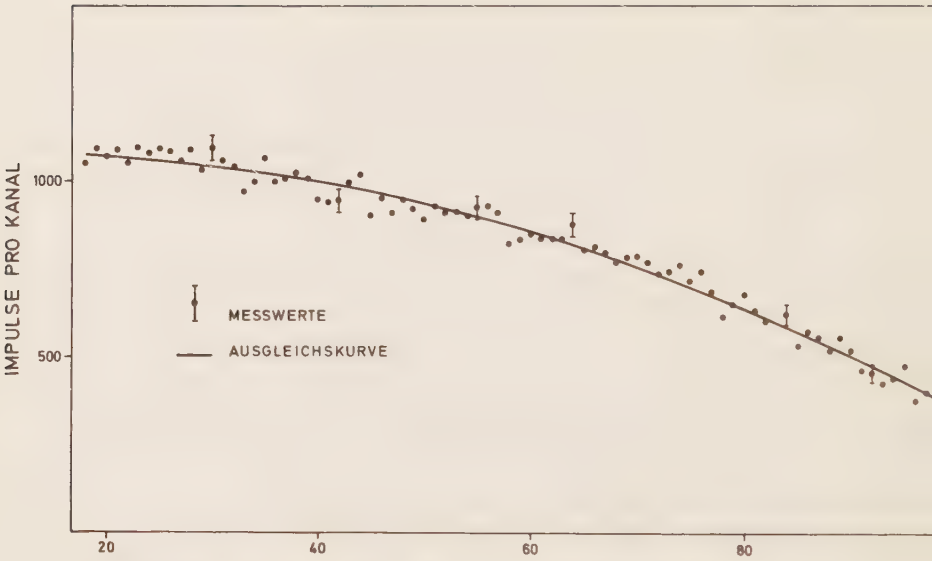

Fig. 5.9 UNTERGRUND DES FLUGZEITSPEKTRUMS MIT AUSGLEICHSKURVE (10 MESSUNGEN)

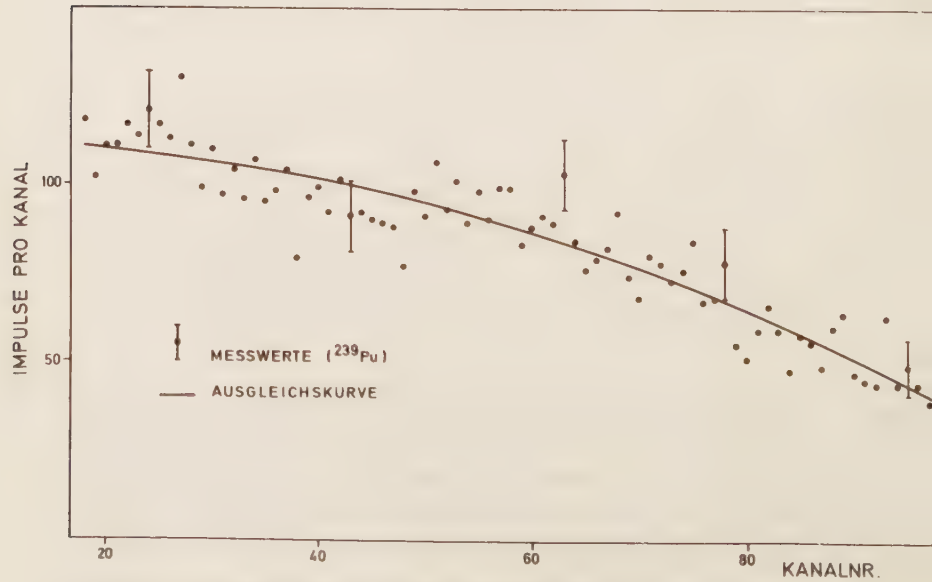

Fig. 5.10 UNTERGRUND DES FLUGZEITSPEKTRUMS MIT AUSGLEICHSKURVE (10 MESSUNGEN)

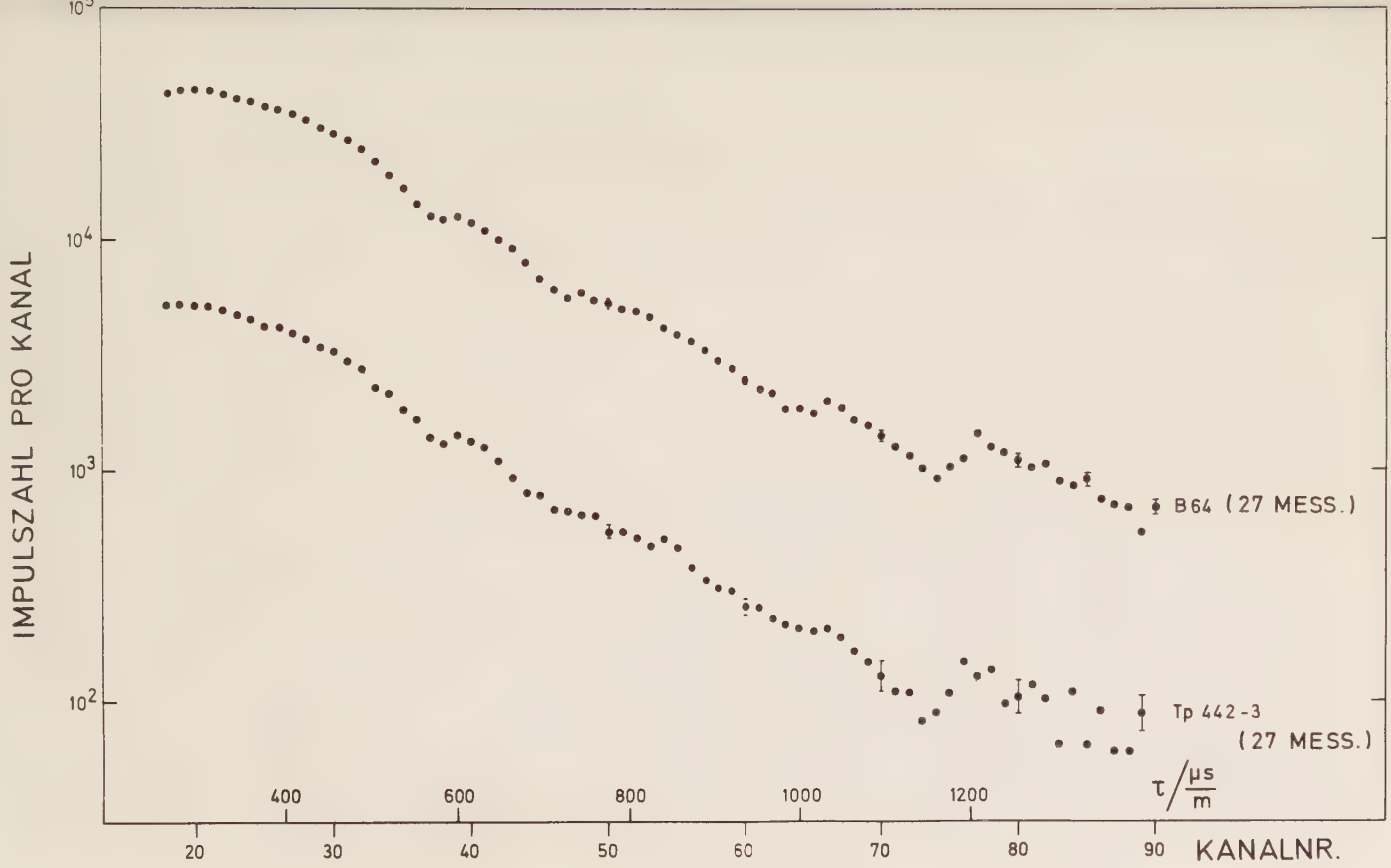

Fig. 5.11 FLUGZEITSPEKTREN (MIT KORREKTUR FÜR NULEFFEKT UND TOTZEIT)

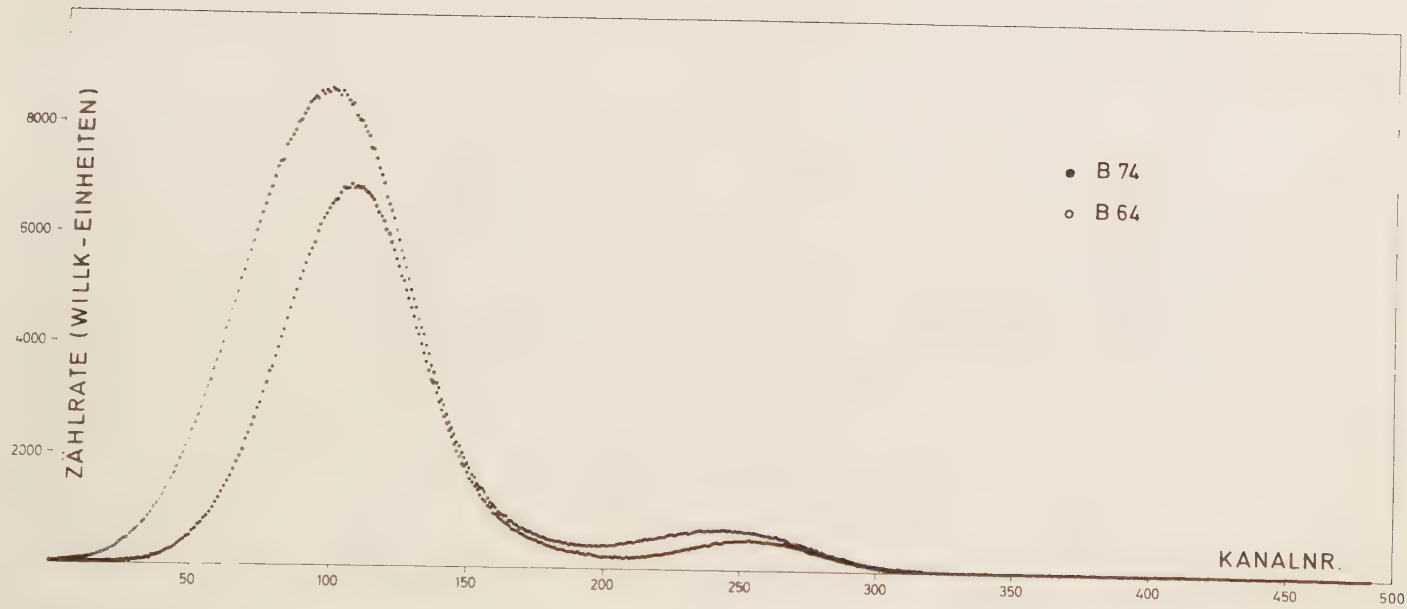

Fig. 5.12 IMPULSHÖHENSPEKTRUM VON $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li\ ^{7}Li^{*}$

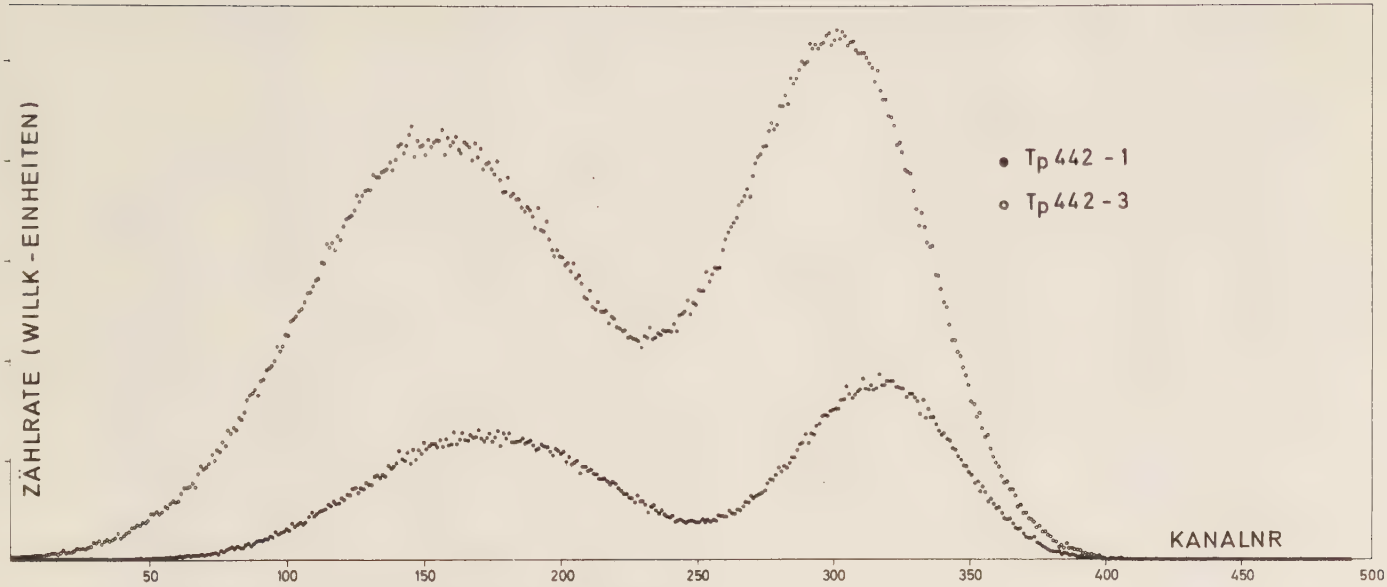

Fig. 5.13 IMPULSHÖHENSPEKTRUM VON ^{239}Pu (n,f)

Kohärente Streuung der Neutronen an den polykristallinen Materialen Fe und Al des Rotors bewirken die in den Flugzeitspektren Fig. 5.11 bei höheren Flugzeiten ersichtlichen Kanten (siehe A3 und Fig. A5). Diese beeinflussen das Verhältnis C_α / C_f bzw. den Spaltquerschnitt σ_f nicht, da der Beitrag der kohärenten Streuung klein und für beide Spektren gleich ist.

5.2. Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeiten ε_f und ε_α

Bei der Berechnung der Spaltquerschnitte nach der Formel 2.4 spielt das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten eine Rolle:

$$\frac{\varepsilon_\alpha}{\varepsilon_f} = \frac{G_\alpha}{G_f} \cdot \frac{r_\alpha}{r_f} \cdot \frac{d_\alpha}{d_f} \qquad (5.3)$$

G_α bzw. G_f = Geometriefaktor bei der α-bzw. Spaltfragmentzählung

r_α bzw. r_f = Rückstreukorrekturfaktor bei der α- bzw. Spaltfragmentzählung

d_α bzw. d_f = Diskriminatorabschneidekorrektur bei der α - bzw. Spaltfragmentzählung.

Da nur das Verhältnis der einander entsprechenden Korrekturfaktoren für die α - bzw. Spaltfragmentzählung eingeht, ist ihr Einfluss gering.

Auf die kleinen Unterschieden der beiden Geometriefaktoren und Rückstreukorrekturfaktoren wird nicht korrigiert. Sie werden bei der Fehlerangabe (Abschn. 6.2) berücksichtigt. G_α / G_f und r_α / r_f werden somit in der Beziehung 5.3 gleich Eins gesetzt.

Entweder das leichte oder das schwere Fragment einer Spaltreaktion kann registriert werden, dagegen nur das α-Teilchen einer $^{10}B(n, \alpha)^7Li$-Reaktion. Dies ergibt:

$$d_\alpha / d_f = 0,5 \qquad (5.4)$$

Bei einer Messung ohne den Neutronenstrahl werden oberhalb der Diskriminatorschwelle keine α-Pile-up Impulse nachgewiesen. Die gute Auflösung der ^{7}Li- und α-Spektren ermöglicht eine gute Trennung der ^{7}Li- und α-Teilchen. Aus der stetigen Abnahme des α-Spektrums zur Diskriminatorschwelle hin (Fig. 5.12) lässt sich kein bemerkenswerter Einfluss des ^{7}Li-Spektrums oberhalb der Diskriminatorschwelle feststellen.

Der Effekt der Selbstabsorption ist abhängig von der Schichtdicke des Targets und bewirkt eine Verbreiterung der Energieverteilung sowie Verschiebung zu kleineren Energien und eine Zunahme des niederenergetischen Teiles (siehe dazu Fig. 5.12, 5.13). Für die α-Teilchen lässt sich das gemessene Spektrum aus der bekannten Reichweite-Energie Beziehung und der Auflösungsfunktion beschreiben und somit der Teilchenverlust unterhalb der Diskriminatorschwelle angeben.

Grössere Diskrepanzen bestehen für die Reichweite-Energie Beziehung der Spaltfragmente (ALEXANDER et al., 1960). Daher und wegen des grösseren Aufwandes einer Anpassung mit einer Integralfunktion wird nur der niederenergetische Teil der Impulshöhenspektren mit mathematischen Funktionen gefittet, zumal die Korrekturen nicht gross sind. Dies ist erstens auf die dünne Targetschicht zurückzuführen und zweitens auf den kleinen Geometriefaktor, denn nur Teilchen mit einem Winkel grösser als 45° zwischen Targetoberfläche und Teilchenrichtung können den Detektor erreichen.

Mit der symmetrischen, modifizierten Lorentzfunktion lässt sich der niederenergetische Teil des α-Spektrums sehr gut beschreiben (Fig. 5.14):

$$Y(x) = \frac{x_3}{1 + x_0(x-x_4)^2 + x_1(x-x_4)^4 + x_2(x-x_4)6} \qquad (5.5)$$

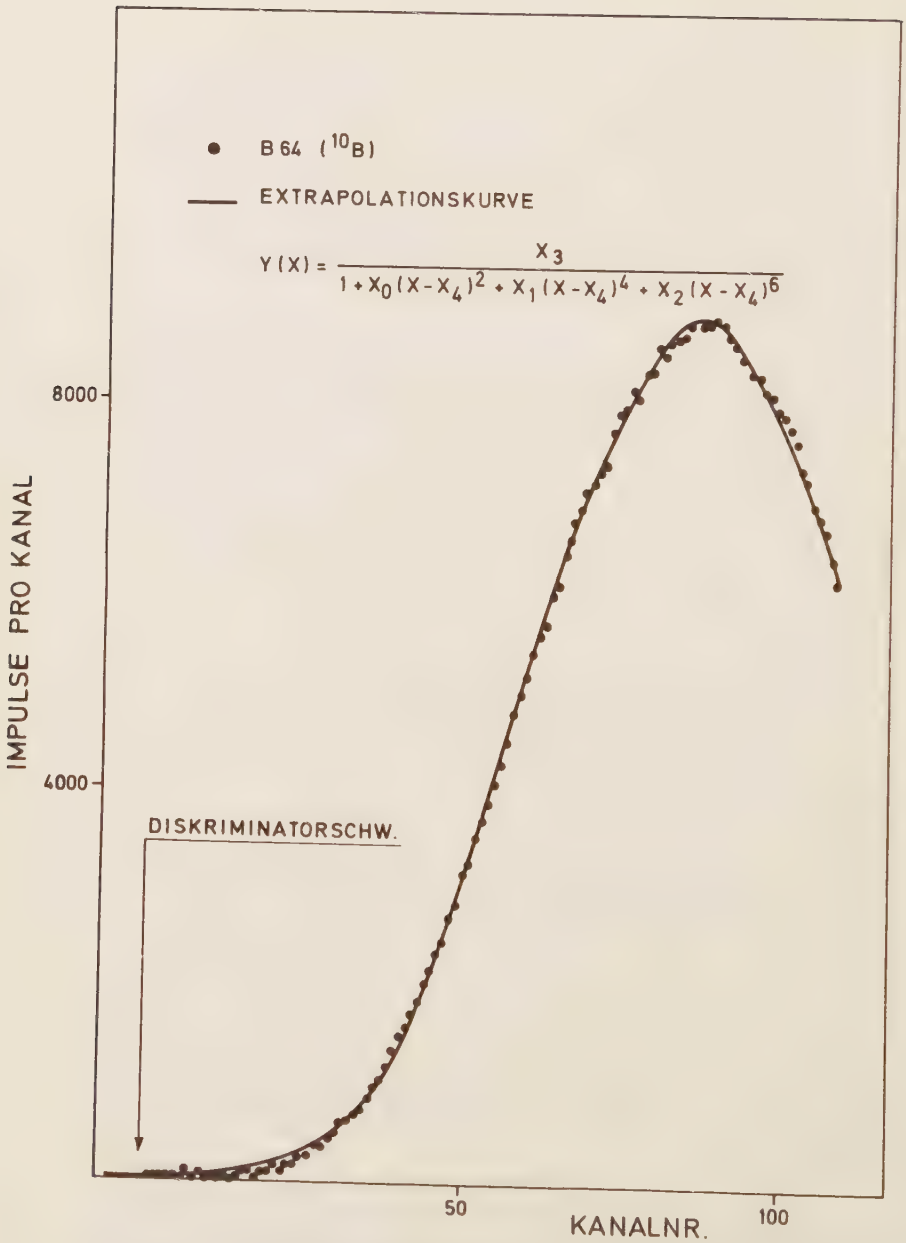

Fig. 5.14 EXTRAPOLATION DES α - IMPULSHÖHENSPEKTRUMS

x_3 = Inhalt des Kanales x_4
x = Kanalnummer (ganze Zahlen)
x_4 = Piklage
x_o, x_1, x_2 = Kurvenformparameter

Mit Hilfe der α-Teilchenenergien (E_{α_o} = 1,79 MeV, E_{α_1} = 1,48 MeV; DERUYTTER und PELFER, 1967) berechnet sich der der Teilchenenergie Null entsprechende Kanal zu $x_n \sim$ - 510. Die Extrapolation mit (5.5) von der Diskriminatorschwelle bis x_n ergibt einen Zählverlust von nur 0,24%.
Keine nennenswerte Beiträge liefern die Kanäle $x \sim$ - 200 bis x_n = - 510.

Der niederenergetische Teil des Impulshöhenspektrums der Spaltfragmente (Fig. 5.15) wird mit der folgenden Funktion approximiert:

$$Y(x) = \frac{x_1}{1 + x_o (x-x_2)^2} \qquad (5.6)$$

x_1 = Inhalt des Kanales x_2
x = Kanalnummer (ganze Zahlen)
x_2 = gewählte Piklage (kein freier Parameter)
x_1 = Kurvenformparameter

Der der Fragmentenenergie Null entsprechende Kanal x_n wird mit Hilfe des Spektrums (Fig. 5.13) des leichteren Pu-Targets (Tp 442-1) bestimmt. Der Effekt der Selbstabsorption ist bei diesem am geringsten. Nach NEILER et al., 1966 sind die mittleren Energien des leichten bzw. des schweren Spaltfragmentes: $\bar{E}_l$ = 103,4 MeV bzw. $\bar{E}_s$ = 74,5 MeV. Der Kanal x_n berechnet sich unter Berücksichtigung eines Impulshöhendefektes zu x_n = - 125.

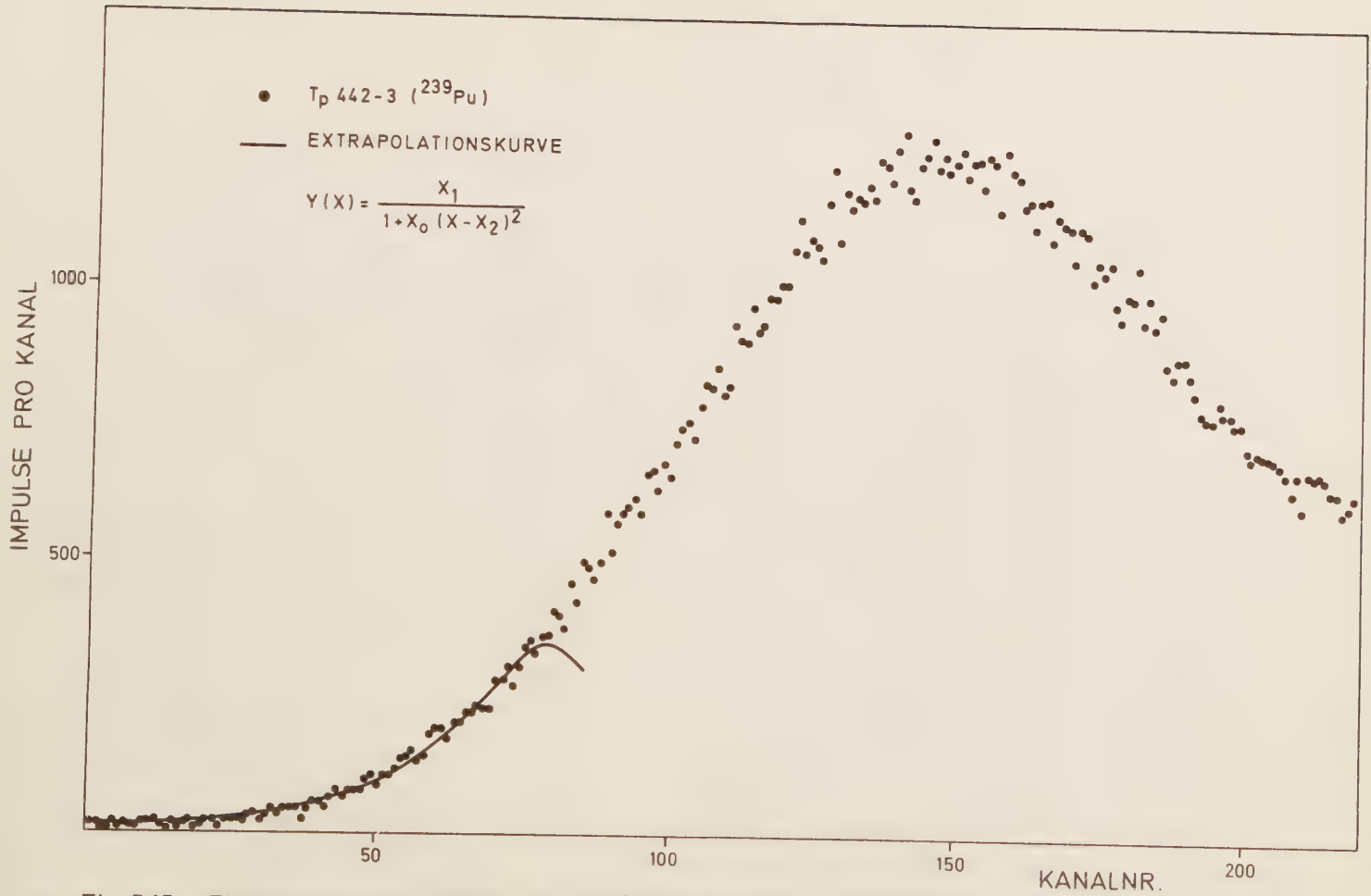

Fig. 5.15 EXTRAPOLATION DES IMPULSHÖHENSPEKTRUMS

Die hochenergetischen Spaltfragmente (Energien von etwa 50 - 100 MeV) erzeugen eine hohe Ladungsdichte im Halbleiterdetektor, sodass infolge der höheren Rekombinationswahrscheinlichkeit die Zeit der Ladungsträgersammlung nicht mehr klein ist gegenüber der effektiven Lebensdauer der Ladungsträger. Der daraus resultierende Ladungsverlust, Impulshöhendefekt genannt, kann bis zu 10% betragen (DERUYTTER, 1963).

Die Extrapolation der Anpassungskurve (Fig. 5.15) ergibt einen Zählverlust von 0,27%. Ab Kanal x = - 100 ist der Beitrag zum Zählverlust zu vernachlässigen.
Unter Berücksichtigung dieser Zählverluste und (5.4) erhält man für die Nachweiswahrscheinlichkeiten:

$$\frac{\varepsilon_{\sim}}{\varepsilon_{f}} = 0,50015 \qquad (5.7)$$

Der spontanen Spaltung und den hochenergetischen $\sim$-Teilchen der tertiären Spaltung wird keine Rechnung getragen.

Der Anteil der spontanen Spaltung beträgt weniger als 0,001% und wird sowohl im direkten Spektrum als auch in dem des Untergrundes registriert.

Auf etwa 400 binäre Spaltungen kommt eine tertiäre Spaltung. Weiterhin beträgt die mittlere Energie der tertiären α-Teilchen ca. 16 MeV, was einer Reichweite von 50 /um im Silizium-Halbleiterdetektor entspricht. Die Dicke der Sperrschicht des Detektors ist bei einer Arbeitspannung von 50 V um die Hälfte kleiner. Folglich können bei einer Diskriminatorschwelle von etwa 25 MeV keine tertiären α-Teilchen von 8 MeV (= mittlere Energieabgabe der α's im Detektor) gezählt werden.

6. Ergebnisse der Messung

6.1. Spaltquerschnitt

Die Berechnung der Spaltquerschnitte erfolgt nach (2.4).

Gleichung (6.1) gibt die Beziehung der Kanalnummer mit der Flugzeit pro Meter an:

$$\tau = \frac{(n - 0,5)\,\Delta t_A + t_o}{L} \qquad (6.1)$$

mit

τ = Neutronenflugzeit in /us/m, der Mitte des n. Kanals entsprechend

n = Kanalnummer des Flugzeitanalysators

Δt_A = 32 /us = Kanalbreite des Flugzeitanalysators

t_o = Verzögerung des in der Mitte des n. Kanals eingeschriebenen Impulses gegenüber dem Zeitpunkt der maximalen Rotordurchlässigkeit in /us (Nullpunkt der Flugzeitachse)

L = 2,0036 $\pm$ 0,0002 m = Flugweg zwischen Rotor- und Targetmitte

Die Verzögerungszeit, t_o wird aus der Kalibrierung der Flugzeitachse mit der Bragg-Kante bei der Wellenlänge $\lambda = 2\,d_{110}$ mit dem Netzebenabstand d_{110} für die 110-Ebenen des α-Eisens bestimmt. Die dazu ausgeführte Transmissionsmessung am Eisenpulver und die Auswertung wird im einzelnen im Anhang 3 beschrieben. Die Messung ergibt für die Verzögerungszeit t_o = - 30,2 /us.

Eine Zusammenstellung aller bei der Berechnung der Spaltquerschnitte benutzten numerischen Werte enthält Tabelle 6.1

Tab. 6.1: Eingangsgrössen zur Berechnung von σ_f für ^{239}Pu

$\varepsilon_\alpha / \varepsilon_f$	0,50015
$N_{^{10}B} / N_{^{239}Pu}$	3,458
$\sigma^o_{^{10}B}$	3835 b
Δt_A	32 /us
t_o	- 30,2 /us
L	2,0036 m

Bei der Berechnung des Verhältnisses der Anzahl der ^{10}B- und ^{239}Pu-Atome aus den jeweiligen Massen (Tab. 3.4 und 3.6) werden die Atommassen (Hb. of Chem. and Phys., 1970) $m_{^{10}B} = 10,0129$ u und $m_{^{239}Pu} = 239,0522$ u berücksichtigt.

Die Spaltquerschnitte sind in Fig. 6.1 dargestellt. Die angedeuteten Fehler geben nur den statistischen Fehler an. Die Spaltquerschnitte oberhalb von 600 /us/m und unterhalb von 200 /us/m werden wegen ihrer geringen Statistik und die im Bereich τ = 200 - 280 /us/m liegenden wegen grösserer Auflösungskorrekturen nicht zur Bestimmung des σ^o_f-Wertes benutzt.

Ausser den Spaltquerschnitten sind in Figur 6.1 eine Ausgleichsgerade $\sigma_f = a\,\tau + b$ und eine angepasste Interferenzkurve (Abschn. 8) eingezeichnet. Der 2200 m/s - Wert $\sigma^o_f = 742,5$ b der Geraden mit den Konstanten a = $(1,420 \pm 0,015) \frac{b}{/us/m}$, b = $(97,1 \pm 5,6)$ b und dem Korrelationskoeffizienten ρ (a, b) = - 0,98 dient als 1. Näherungswert für die Bestimmung von

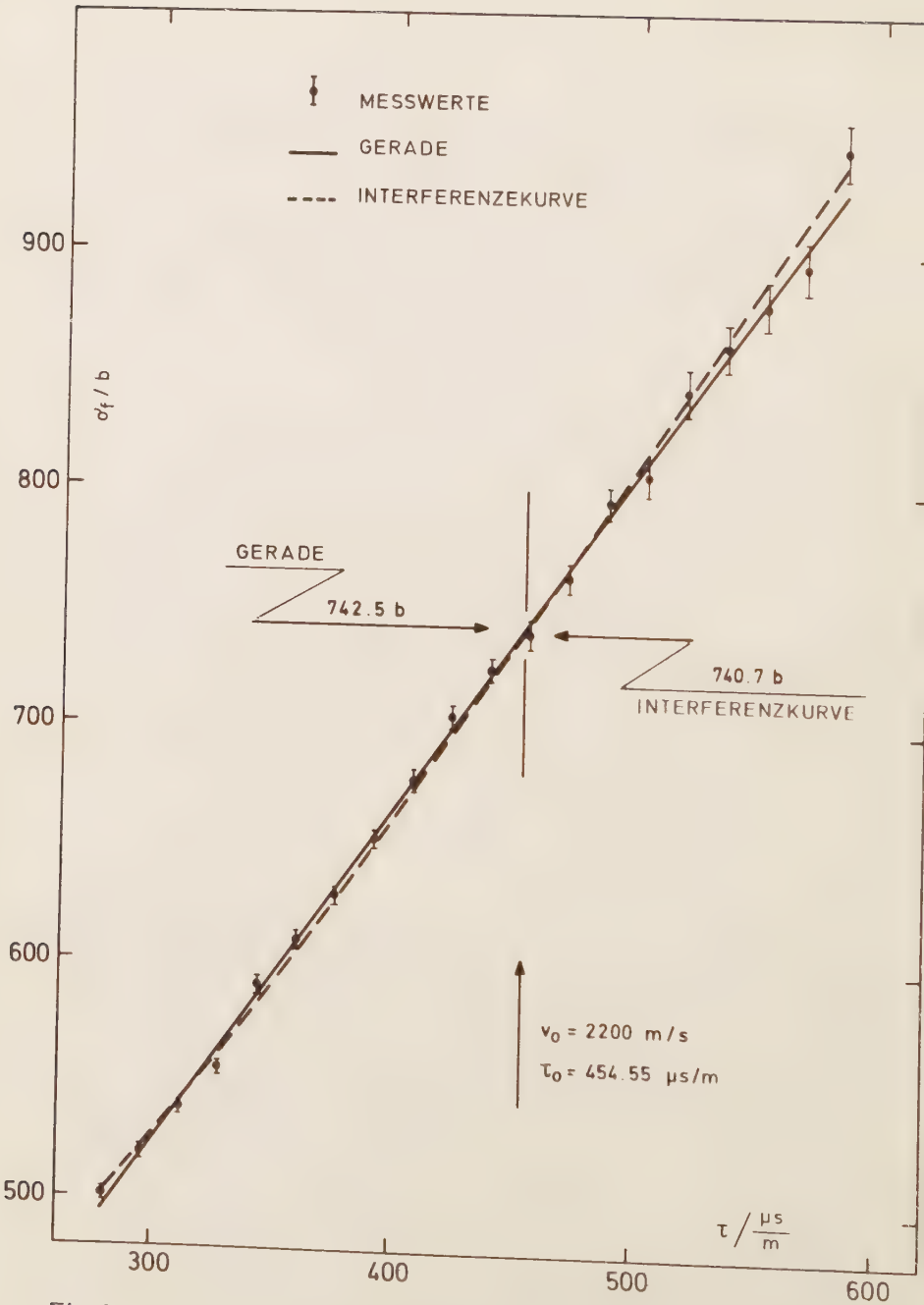

Fig. 6.1 σ_f ALS FUNKTION VON τ

Parametern der Interferenzkurve.

Eine in einem grösseren Messbereich (0,01 - 20 eV) angepasste Interferenzkurve wird nach der Methode der kleinsten Quadrate an die Messwerte der Figur 6.1 derart angepasst, dass die Kurvenform unverändert bleibt und allein ein Verschiebungsparameter in Richtung der σ_f -Achse optimalisiert wird mit dem Ergebnis $\sigma_f^o = 740,7$ b.

In Figur 6.2 sind die grösseren Unterschiede der beiden Kurvenformen besser erkennbar. Daneben wird eine Kurve, berechnet nach der Breit-Wigner Formel mit den Parametern der Interferenzformel, eingezeichnet, sie unterscheidet sich in der Steigung um 2% von der Interferenzkurve.

Die ersichtliche Abhängigkeit des 2200 m/s-Wertes von der Kurvenform erschwert seine Bestimmung. Es gibt keine theoretisch begründete Funktion, die es gestattet, in einer nicht komplizierten Abhängigkeit von der Neutronengeschwindigkeit die im thermischen Bereich gemessenen Spaltquerschnitte zu beschreiben. Anpassungen mit willkürlichen, aber einfachen Funktionen, z. B. mit Polynomen verschiedenen Grades (Fig. 6.3 - 6.8)

$$\sigma_f \sqrt{E} = \sum_{i=1}^{N} c_i E^{i-1}$$

ergeben σ_f^o -bzw. $\sigma_f^o \sqrt{E_o}$ -Werte, die zwischen denen der Gerade ($\sigma_f = a\tau + b$) und der Interferenzkurve liegen (Fig. 6.9 und Tab. 6.2). Die einzelnen Fehler der verschiedenen Anpassungen sind statistische Fehler.

Als Endresultat wird der 2200 m/s-Wert der Interferenzkurve und nicht der Mittelwert aller dieser Interpolationswerte angenommen. Denn die Interferenzkurve zeichnet sich erstens dadurch aus, dass sie theoretisch begründet ist, und zweitens, dass der aus ihr abgeleitete g_f -Faktor (Abschn. 7) mit dem anderer

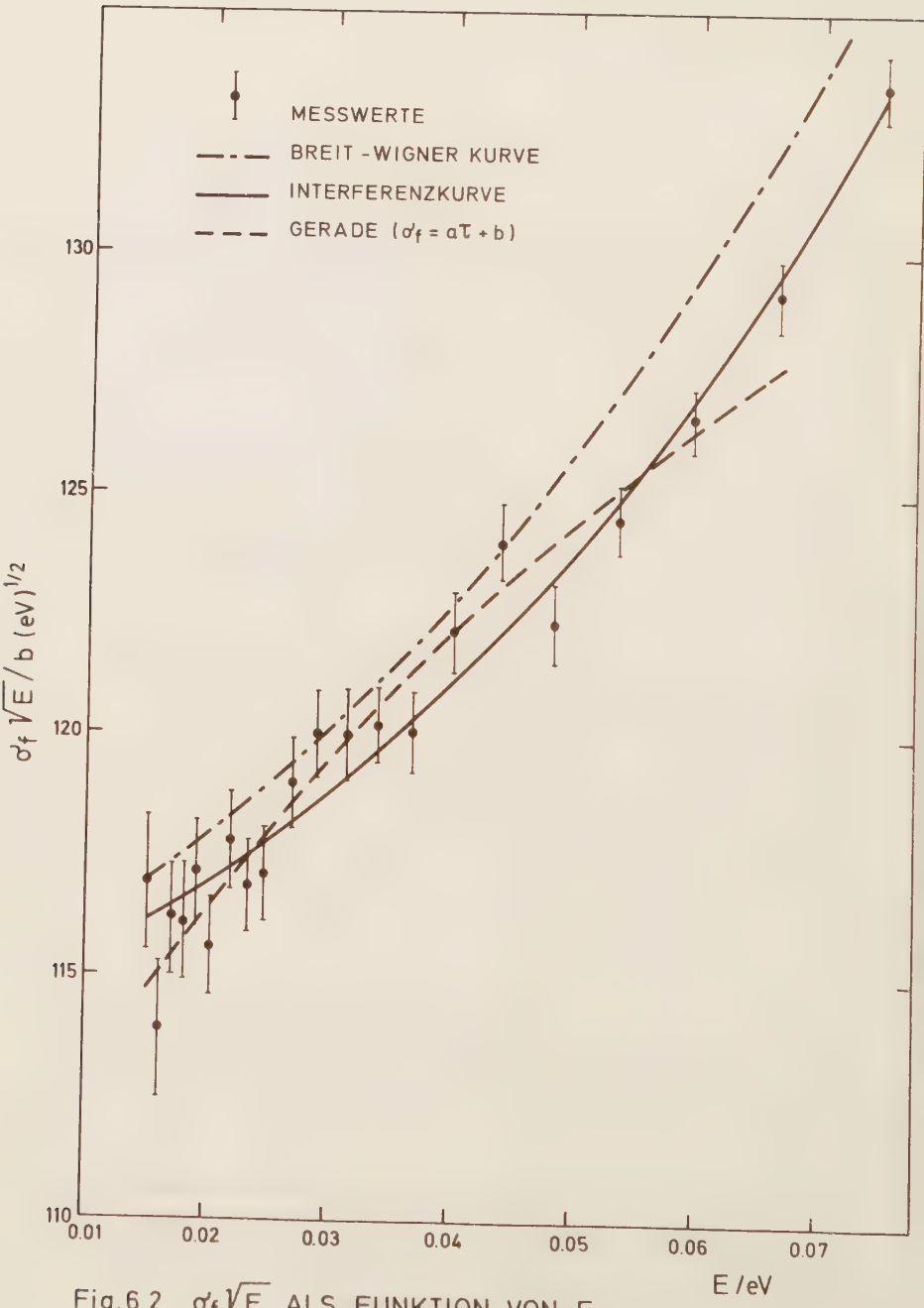

Fig.6.2 $\sigma'_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION VON E

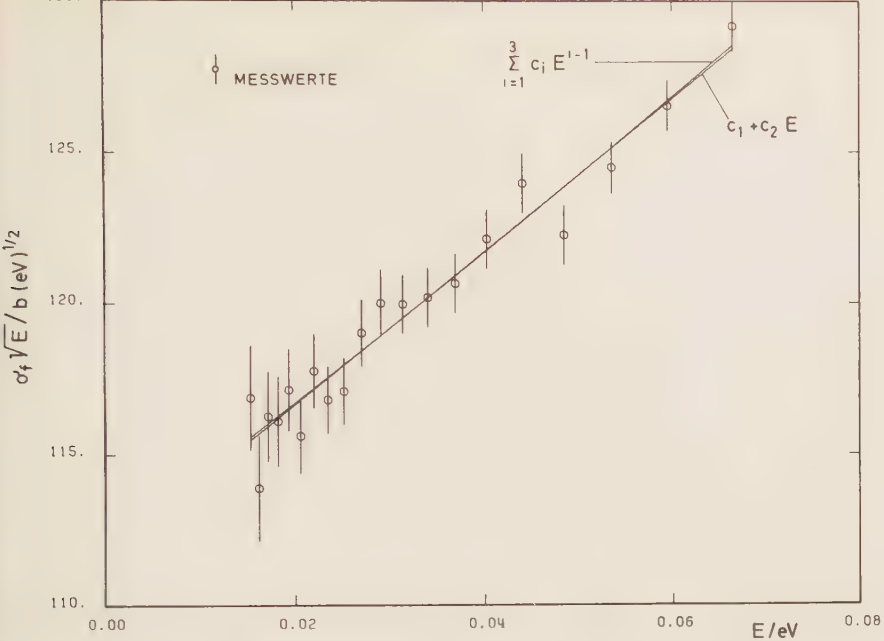

Fig. 6.3 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E.

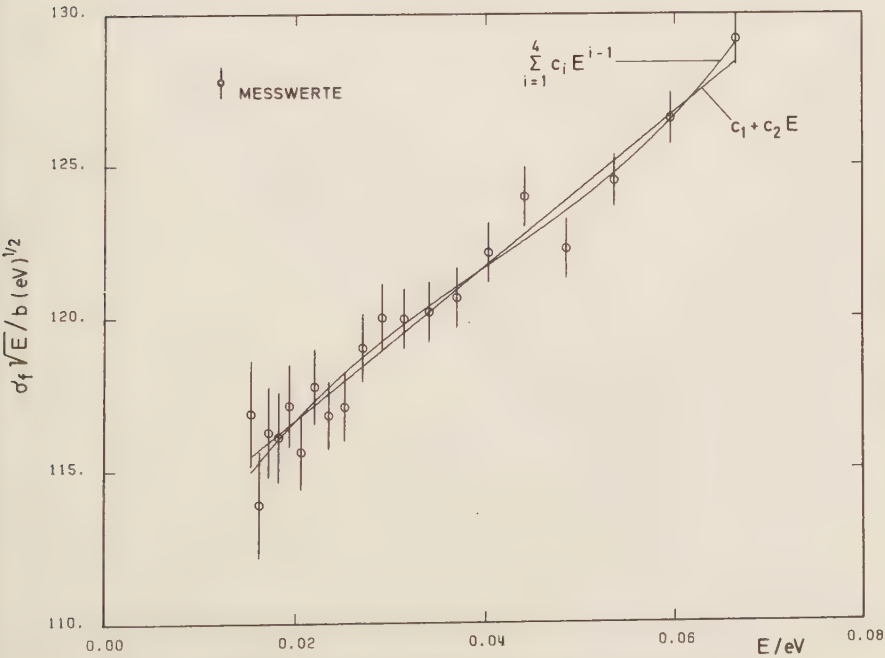

Fig. 6.4 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E.

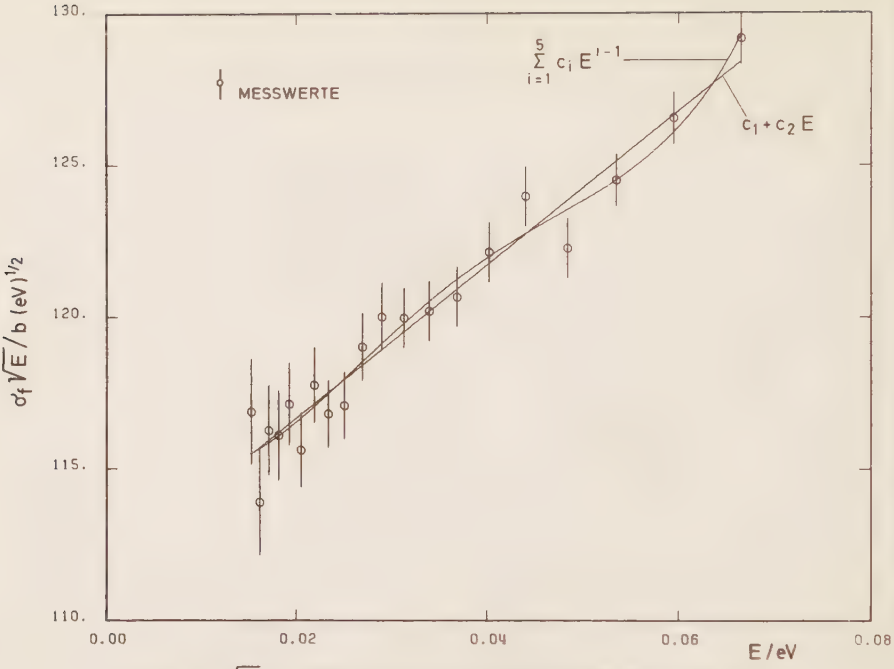

Fig 6.5 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E

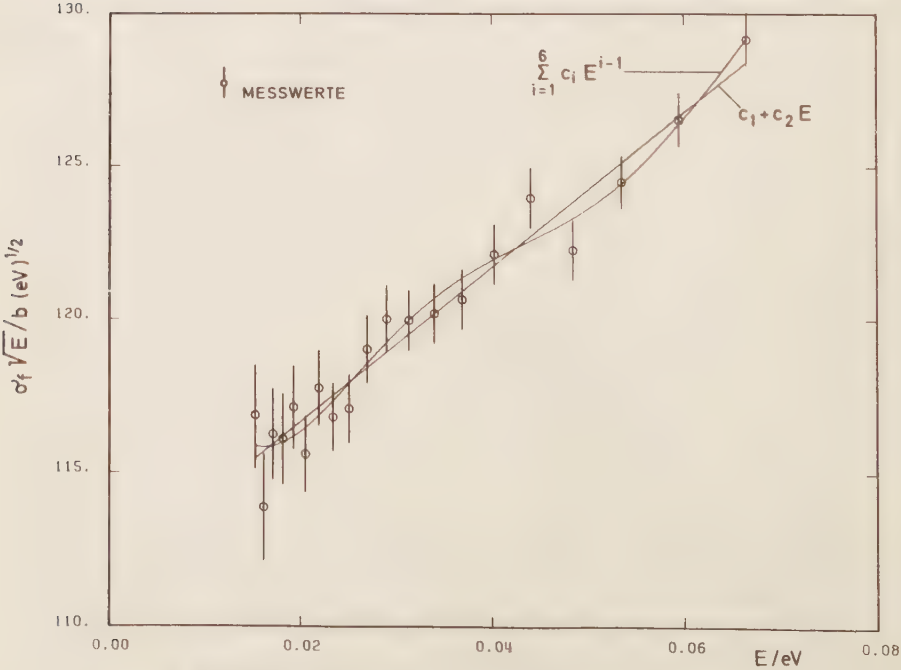

Fig. 6.6 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E.

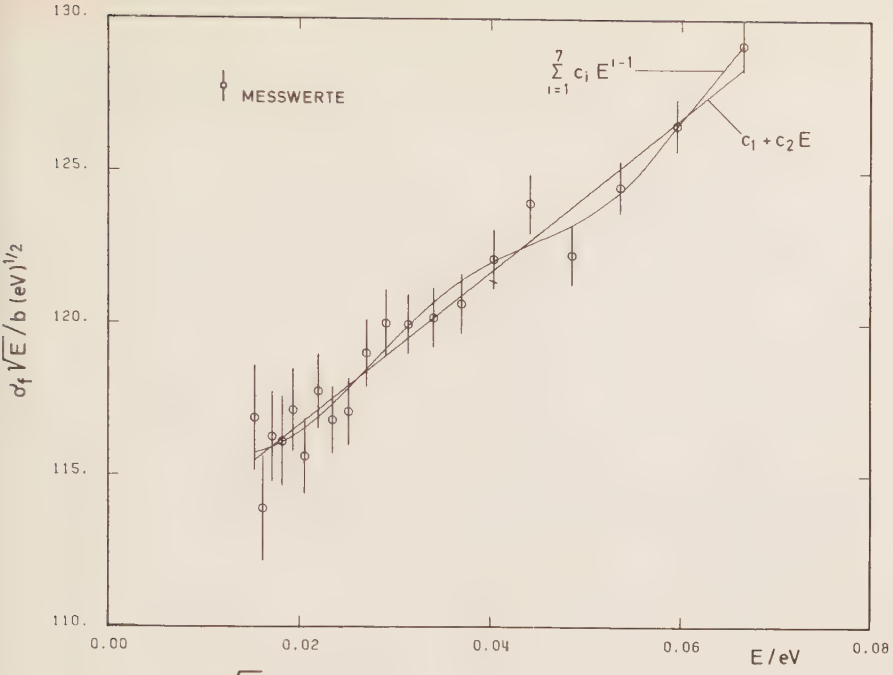

Fig. 6.7 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E.

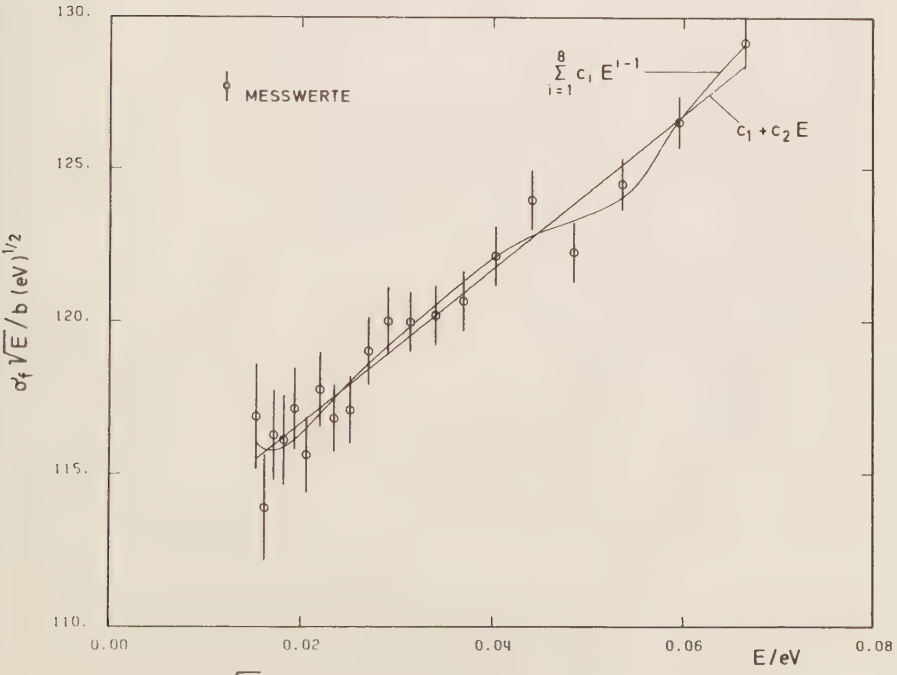

Fig. 6.8 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION DER NEUTRONENENERGIE E.

Tab. 6.2: Ergebnisse der verschiedenen Anpassungen für $\sigma_f^o \sqrt{E_o'}$ (Ang. Fehler des Mittelwertes = mittlerer Fehler des Einzelwertes)

	$\sigma_f^o \sqrt{E_o}$ (b . $(eV)^{1/2}$)	Standardabw. (b . $(eV)^{1/2}$)
N		
2	118,00	0,25
3	118,00	0,26
4	118,24	0,30
5	118,00	0,36
6	117,95	0,37
7	117,90	0,40
8	118,06	0,47
Mittelwert (N 2 - 8)	118,02 $\hat{=}$ 742,0 b	0,11
Gerade ($\sigma_f = a\tau + b$)	118,11	0,27
Interferenzkurve	117,81	0,23
Mittelwert (einschl. Gerade u. Interf.)	118,00 $\hat{=}$ 741,9 b	0,12 (0,1%)

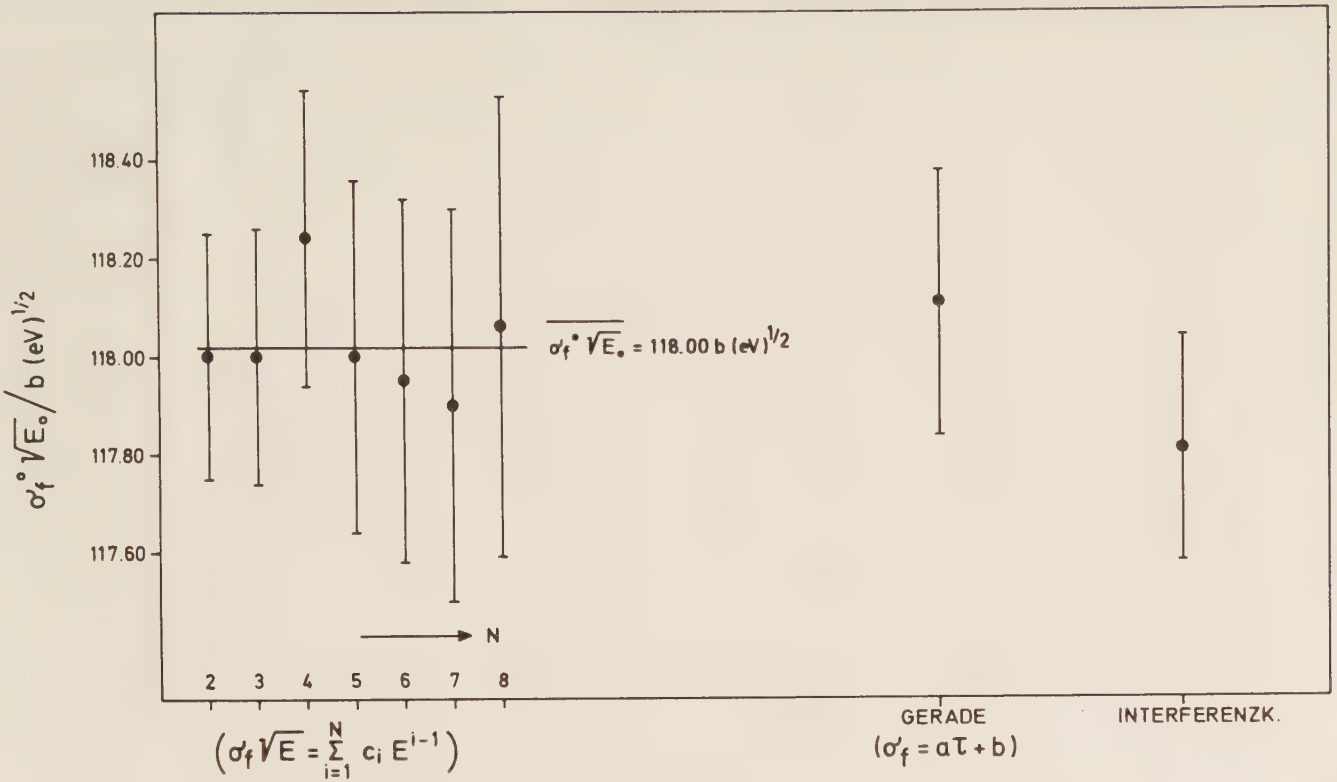

Fig. 6.9 ERGEBNISSE DER VERSCHIEDENEN ANPASSUNGEN FÜR $\sigma_f^\circ \sqrt{E_\circ}$
(ANG. FEHLER = STATISTISCHE FEHLER)

Autoren sehr gut übereinstimmt.

Der Einfluss der Kurvenform-Abhängigkeit auf die Bestimmung des 2200 m/s-Wertes wird bei der Fehlerangabe berücksichtigt.

6.2. Fehler von σ_f^o -

Die Fehler der Grössen in (2.4) werden hier einzeln diskutiert:

a) $\sigma^o_{^{10}B}$: Die im Abschn. 2 angegebene Standardabweichung beträgt 0,13%.

b) C_f/C_γ : Die Anpassung der Messwerte mit der Interferenzkurve liefert als Standardabweichung 1,5 b (0,20%). Als Vergleich sei der aus der Gerade folgende Wert angegeben: 1,7 b (0,23%). Hinzu kommt noch der maximale Einfluss der Auflösung von 0,05% (A.6). Die beiden Fehler sind unabhängig und somit ist der Fehler 0,21%.

c) $N_{^{239}Pu}$: Nach Tabelle 3.4 ist der Fehler 0,16%.

d) $N_{^{10}B}$: Die Standardabweichung der aus der Ausgleichsgerade bestimmten ^{10}B-Masse (B64) (Tab. 3.6) beträgt 0,26%.

e) v: Der Fehler von v bzw. τ setzt sich aus den drei unabhängigen Grössen Δt_A, t_o und L (6.1) zusammen. Die Zeitimpulse für den Flugzeitanalysator liefert ein 2MHz Quarzoszillator, somit kann die maximale Phasenverschiebung des Zeitimpulses gegenüber dem Startimpuls T_o 0,5 /us betragen. Die der Figur A3.4 entnommene Ungenauigkeit für die Verzögerungszeit t_o ist sicherlich nicht grösser als $\pm$ 1 /us. Der Fehler der Längenmessung ist klein (0,01%). Dies ergibt als Fehler von v $\Delta v/v = 0,15\%$.

f) $\varepsilon_\gamma / \varepsilon_f$: Die Fehlerquellen der unterschiedlichen Geometriefaktoren G_γ und G_f, der Rückstreuung r_γ und r_f und der Extrapolation der zwei Impulshöhenspektren zum Energienullpunkt bestimmen den Fehler der Nachweiswahrscheinlichkeiten.

Die Differenz der beiden Abstände Detektor-Target (Pu, B) beträgt $\Delta z = 0,02$ mm, des Targetradius $\Delta b = 0,1$ mm und der nichtaxialen Lage $\Delta g = 0,19$ mm. Der Einfluss der unterschiedlichen Geometrien auf den Geometriefaktor wird im Anhang 10 berechnet: $G_\alpha / G_f (\Delta g) \hat{=} < 0,01\%$, $G_\alpha / G_f (\Delta z) \hat{=} 0,09\%$ und $G_\alpha / G_f (\Delta b) \hat{=} 0,04\%$.

Der Effekt der Rückstreuung wird wegen der kleinen Zählgeometrie stark reduziert. Hauptsächlich ist eine Rückstreuung von der gegenüber der Targetschicht dickeren SiO_2 Unterlage zu erwarten. Nach der Theorie von CRAWFORD, 1949 kann die α-Rückstreuung hier in den 2π-Raum 1,2% betragen. WALKER, 1966 bestimmt die α-Rückstreuung in Abhängigkeit vom Streuwinkel und kann für grössere Winkel (Targetoberfläche - Streurichtung) keine α-Teilchen nachweisen.

Die von ENGELKEMEIR und WALTON, 1964 gemessene Winkelverteilung der rückgestreuten Spaltfragmente ergibt ein ähnliches Bild. Die maximale Rückstreuung liegt bei etwa 5°.
Für eine Al-Unterlage lässt sich eine 0,01% Rückstreuung in den Winkelbereich von 35 - 90° abschätzen.

Zieht man in Betracht, dass nur Teilchen mit einem Winkel grösser als 48° den Detektor erreichen, dann ist den Fehler, ve rursacht durch die Rückstreuung, nicht grösser als 0,05%.

Der Fehler der Extrapolation des Impulshöhenspektrums der α-Teilchen und der Spaltfragmente wird auf 0,1% geschätzt.

Die Zusammenfassung aller Einzelfehler ergibt die Standardabweichung

$$s_{\varepsilon_\alpha / \varepsilon_f} = 0,15\%$$

Tabelle 6.3: Zusammenstellung der Fehler für σ_f^o

Fehlerquellen	Standardabweichung s_i
$\sigma^o_{^{10}B}$	0,13
C_f/C_α	0,21
$N_{^{239}Pu}$	0,16
$N_{^{10}B}$	0,26
ν	0,15
$\varepsilon_\alpha / \varepsilon_f$	0,15
Kurvenform	0,10
Totaler Fehler = $\sqrt{\sum_i s_i^2}$	= 0,46 %
Endresultat =	740,7 + 3,4 b

g) Kurvenform: Der mittlere Fehler der aus allen Anpassungen erhaltenen 2200 m/s-Werte wird in Tabelle 6.2 mit 0,1% angegeben.

In Tabelle 6.3 sind alle Fehler, zusammen mit dem totalen Fehler und dem Endresultat, aufgeführt.

7. $g_f(T)$-Faktor von Westcott

Allgemein lautet die Reaktionsrate R pro Atom einer neutroneninduzierten Reaktion:

$$R = \int_0^\infty n(v) \cdot \sigma(v) \cdot v \cdot dv \qquad (7.1)$$

mit $n(v)$ = Neutronendichte im Geschwindigkeitsintervall $v, v + dv$

σ = Wirkungsquerschnitt

WESTCOTT, 1957 definiert einen sogenannten effektiven Wirkungsquerschnitt $\hat{\sigma}$, sowie einen g(T)-Faktor für eine reine Maxwellverteilung mit der Temperatur T folgendermassen:

$$R = n \cdot v_o \hat{\sigma} = n \cdot v_o \cdot \sigma_o \cdot g(T) \qquad (7.2)$$

mit $n = \int_0^\infty n(v) \cdot dv$

v_o = 2200 m/s

σ_o = Wirkungsquerschnitt bei v_o.

Aus einem Vergleich von (7.2) mit (7.1) lässt sich g(T) bestimmen:

$$g(T) = \frac{\int_0^\infty n(v) \cdot \sigma(v) \cdot v \cdot dv}{\sigma_o \cdot v_o \int_0^\infty n(v) \cdot dv} \qquad (7.3)$$

und entsprechend für eine Energieverteilung:

$$g(T) = \frac{1}{\sigma_o \sqrt{E_o}} \int_0^\infty \sigma(E) \cdot \sqrt{E} \cdot n(E) \cdot dE \qquad (7.4)$$

mit: $\int_0^\infty n(E) \cdot dE = 1$

$$n(E) = 2 \sqrt{\frac{E}{\pi}} (k\,T)^{-3/2} \exp\left\{ - \frac{E}{kT} \right\}$$

k =Boltzmannsche Konstante

Verläuft der Wirkungsquerschnitt nach einem 1/v-Gesetz, dann reduziert sich (7.4) zu g(T) = 1. Der g(T)-Faktor stellt somit ein Mass für die Abweichung vom 1/v-Gesetz dar. Er ist nur von der Kurvenform und nicht von den absoluten Werten der Wirkungsquerschnitte abhängig.

Seine praktische Bedeutung lässt sich aus Gleichung (7.2) ersehen. Die absolute Zählung mit einem Detektor im Maxwellfeld erfordert nur noch die Kenntnis eines absoluten Wirkungsquerschnittes σ_o. Umgekehrt lässt sich aus einer absoluten Zählung σ_o finden. Nach dieser Methode sind die meisten der in Fig. 1.1 gezeigten 2200 m/s-Werte bestimmt.

Für die Temperatur T = 20,44°C wird der g_f-Faktor für die Pu-Spaltquerschnitte nach der Formel (7.4) berechnet. Bei dieser Temperatur liegen präzise Werte in der Literatur (HANNA et al., 1969) vor, die einen Vergleich ermöglichen.

Im 1. Schritt wird die Messkurve im Bereich 0,008 - 0,0717 eV mit der Funktion $\sigma_f \sqrt{E} = \sum_{i=1}^{3} c_i E^{i-1}$ angepasst. Die Extrapolation dieses Polynoms ergibt den Kurvenverlauf zum Energienullpunkt. Auf der anderen Seite des Energiebereiches werden die am Linac (ZBKM) relativ gemessenen Spaltquerschnitte (DERUYTTER und WAGEMANS, 1972, Fig. 8.2) mit einer energieunabhängigen Konstante und einer

Breit-Wigner Formel für die 0, 3 eV-Resonanz angepasst. Die Approximation liefert die optimalisierten Parameter c_i, die Standardabweichungen $s(c_i)$ und die Korrelationskoeffizienten $\rho(c_i, c_j)$.

Im 2. Schritt erfolgt die Integration nach (7.4). Die Varianz wird gegeben durch die allgemeine Formel:

$$s^2(g_f) = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} \frac{g_f}{c_i} \frac{g_f}{c_j} s(c_i) \cdot s(c_j) \cdot \rho(c_i, c_j) \qquad (7.5)$$

Daneben wird auch der g_f-Faktor allein mit den Daten vom Linac berechnet. In Tabelle 7.1 werden die Ergebnisse mit dem IAEA-Wert verglichen. Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen sie mit ihm überein.

Tabelle 7.1: Vergleich der g_f (20, 44 °C)-Faktoren von ^{239}Pu

Autoren	g_f
IAEA (Hanna et al., 1969)	1, 0548 ± 0, 0030
Diese Arbeit:	
mit Daten vom BR2	1, 0450 ± 0, 0018
mit Daten vom Linac	1, 0566 ± 0, 0018

Die Beiträge zum g_f-Faktor von den Bereichen ausserhalb der Daten vom BR2 sind 11% für 0 - 0, 0086 eV (Extrapolation) und 16% für 0,717 - 0, 5 eV (Daten vom Linac; schon ab 0, 35 eV sind die Beiträge zu vernachlässigen).

Fig. 7.1 zeigt einen Vergleich der zur Berechnung des g_f-Faktors benutzten Kurve mit der Interferenzkurve und der Geraden ($a\tau + b$). Die Kurvenformen, ausser der Geraden, sind fast identisch.

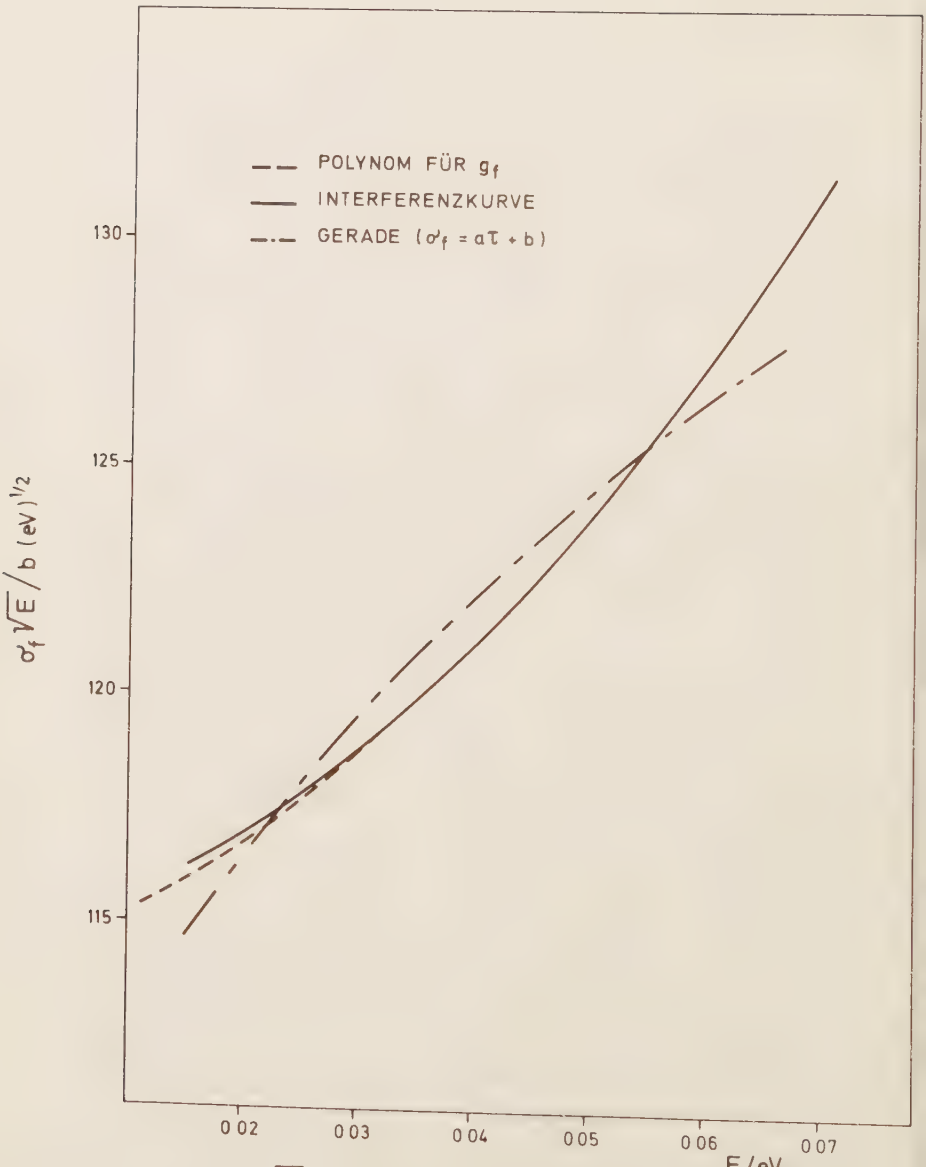

Fig. 7.1 $\sigma'_f\sqrt{E}$ ALS FUNKTION VON E FÜR g_f FAKTOR

8. Interpretation des Spaltquerschnitts

8.1. Einleitung

Die Interpretation der Spaltquerschnitte ist schwierig und bisher noch unvollständig. Vor allen Dingen spielt dabei die Tatsache der Interferenz in den Spaltkanälen und der nicht vollständigen Kenntnis der Spins der Resonanzen eine Rolle. Die einfache Breit-Wigner Formel gibt den Verlauf der Spaltquerschnitte nur annähernd wieder.

VOGT, 1960 hat als Einziger die Spaltquerschnitte von ^{239}Pu für den Bereich 0,01 - 10 eV, ausgehend von dem R-Matrix Formalismus nach WIGNER und EISENBUD, 1947 beschrieben. Seine dabei angenommenen Spinwerte stehen heute zum Teil im Widerspruch zu den gemessenen. Die Messung mit subthermischen Neutronen (0,7 - 4 meV) von GRAMA et al., 1967 und ein Vergleich mit den unter Verwendung der Vogt-Parameter berechneten Spaltquerschnitte (CHRISTU et al., 1969) zeigt eine maximale Diskrepanz von 10%.

Der von Vogt gewählte Energiebereich wird grösstenteils(bis 50%) von den sogenannten negativen Resonanzen beeinflusst. Die Parameter dieser Resonanzen lassen sich nur aus einer Extrapolation gewinnen. Daher sind die von mehreren Autoren (BNL 325, 1965) angegebenen Parameter sehr unterschiedlich.

Mehrere Gründe rechtfertigen eine neue Berechnung, u.a. sind die thermischen Spaltquerschnitte am BR2 mit grosser Genauigkeit gemessen. Die Spinwerte der hier in Frage kommenden positiven Resonanzen sind in den letzten Jahren teilweise direkt oder indirekt bestimmt worden.

8.2. Interferenzformel

Den Wirkungsquerschnitt für eine Reaktion mit dem Eingangskanal c und dem Ausgangskanal c' haben WIGNER und EISENBUD, 1947 formuliert:

$$\sigma_{cc'} = \pi \lambda_c^2 \sum_J g_J \left| \delta_{cc'} - U^J_{cc'} \right|^2 \quad (8.1)$$

c bzw. c' = Eingangs - bzw. Ausgangskanal

λ_c = Wellenlänge der Relativbewegung des Geschossteilchens und des Targetkerns im Eingangskanal

J = Gesamtdrehimpuls (Spin)

g_J = statistischer Spinfaktor

$\delta_{cc'}$ = Kroneckersymbol

$U^J_{cc'}$ = Elemente der Streumatrix U^J

Die Elemente der Streumatrix können nach WIGNER, 1946 in der folgenden Form geschrieben werden (ausführlichere Erläuterung bei VOGT, 1958 und VOGT, 1962):

$$U^J_{cc'} = e^{i(\varphi_c + \varphi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + i \sum_\lambda (\Gamma_{\lambda c})^{\frac{1}{2}} (\Gamma_{\lambda' c'})^{\frac{1}{2}} A_{\lambda\lambda'} \right. \quad (8.2)$$

mit

$$(A^{-1})_{\lambda\lambda'} = (E_\lambda - E)\delta_{\lambda\lambda'} - \frac{i}{2} \sum_c (\Gamma_{\lambda c})^{\frac{1}{2}} (\Gamma_{\lambda' c})^{\frac{1}{2}} \quad (8.3)$$

(c = alle Kanäle)

$e^{i(\varphi_c + \varphi_{c'})}$ = Phasenfaktor ($\neq 1$ nur für ^{239}Pu(n, n'))

$\Gamma_{\lambda c}$ = Halbwertsbreite (proportional der Zerfallswahrscheinlichkeit des Niveaus λ in den Kanal c)

E_λ = Resonanzenergie des Niveaus

E = Energie der Relativbewegung des Geschossteilchens und des Targetkerns im Eingangskanal.

Die Inversion der komplexen Matrix A^{-1} (von (8.3) nach (8.2)) für jeden Energiewert E macht die Anwendung dieser Formeln besonders schwierig.

Der Rang der Niveaumatrix A^{-1} hängt von der grossen Anzahl der Resonanzen mit gleichen J-Werten ab. Der mittlere Abstand der Resonanzen der Pu-Spaltquerschnitte aber ist relativ gross, sodass es Gebiete kleinerer Überschneidung von Resonanzen gibt, die es ermöglichen, das Resonanzgebiet in mehrere Gruppen mit nur wenigen Resonzen zu unterteilen. Die Interferenz zwischen den Resonanzen verschiedener Gruppen ist klein und wird daher vernachlässigt.

Mit dem Neutronenkanal c = n und den Ausgangskanälen der Spaltung $c' = f_i$ ergibt die Summierung über die Ausgangskanäle f_i den totalen Spaltquerschnitt:

$$\sigma_f = \sum_{f_i} \sigma_{nf_i} \qquad (8.4)$$

und mit (8.1,2) folgt:

$$\sigma_f = \pi \lambda_n \sum_J g_J \sum_{f_i} \sum_{\lambda, \lambda', \lambda'', \lambda'''} \cdot$$

$$\cdot \Gamma_{\lambda n}^{1/2} \Gamma_{\lambda' n}^{1/2} \Gamma_{\lambda'' f_i}^{1/2} \Gamma_{\lambda''' f_i}^{1/2} A_{\lambda\lambda''} A^*_{\lambda'\lambda'''} \qquad (8.5)$$

(* = komplex konjugiert)

VOGT, 1958 definiert einen Vektor $\vec{g}_\lambda$, den sogenannten Spaltvektor, mit $\Gamma_{\lambda f_i}^{1/2}$ ($\Gamma_{\lambda f_i}$ = Partialbreiten der Spalt-Ausgangskanäle f_i) als Komponenten. Mit dieser Definition lässt sich die Summe über die Partialbreiten als skalares Produkt ausdrücken:

$$\vec{g}_\lambda \vec{g}_{\lambda'} = \sum_{f_i}^{m} \Gamma_{\lambda f_i}^{1/2} \Gamma_{\lambda' f_i}^{1/2} \qquad (8.6)$$

mit m = Anzahl der Spalt-Ausgangskanäle

oder

$$\vec{g}_\lambda \vec{g}_{\lambda'} = g_\lambda g_{\lambda'} \cos(\theta_\lambda - \theta_{\lambda'}) \qquad (8.7)$$

Der Betrag des Vektors ist:

$$g_\lambda = \sqrt{\sum_{f_i} \Gamma_{\lambda f_i}} = \sqrt{\Gamma_{\lambda f}} \qquad (8.8)$$

Die Nicht-Diagonalelemente von A^{-1} können wegen der grossen Zahl der γ-Übergänge und der Kleinheit der Neutronenbreiten gegenüber den Spaltbreiten in guter Näherung folgendermassen geschrieben werden:

$$(A^{-1})_{\lambda\lambda'} = -\frac{i}{2} \sum_{f_i}^{m} \Gamma_{\lambda f_i}^{1/2} \Gamma_{\lambda' f_i}^{1/2} = -\frac{i}{2} \vec{g}_\lambda \vec{g}_{\lambda'} \qquad (8.9)$$

für $\lambda \neq \lambda'$

Die Diagonalelemente sind (keine Näherung):

$$(A^{-1})_{\lambda\lambda} = E - E_\lambda - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda T} \qquad (8.10)$$

mit $\Gamma_{\lambda T}$ = totale Niveaubreite =

$\Gamma_{\lambda n} + \Gamma_{\lambda \gamma} + \Gamma_{\lambda f}$ ($\Gamma_{\lambda \gamma}$ = γ-Breite)

Nicht die Kenntnis der einzelnen Partialbreiten $\Gamma_{\lambda f_i}$, sondern der Spaltbreite $\Gamma_{\lambda f}$ ist erforderlich. Neben der Beschreibung einer Resonanz mit den fünf Breit-Wigner Parametern E_λ, $\Gamma_{\lambda n}$, $\Gamma_{\lambda f}$, $\Gamma_{\lambda \gamma}$ und J benötigt man zusätzlich nur die Lagen der Spaltvektoren im m-dimensionalen Spaltraum.

8.3 J-Werte

Die Kenntnis der J-Werte erleichtert die Anwendung der Interferenzformel (8.5). Sie werden grösstenteils nach einer indirekten Methode bestimmt: Gemessene Spaltungsparameter dienen zur J-Klassifizierung. Oft stellt sich später heraus, dass dieser Zusammenhang nicht gerechtfertigt ist.

Der statistische Spinfaktor g_J in (8.5) gibt die Wahrscheinlichkeit der mit gleichen J gebildeten Compoundzustände an:

$$g_J = \frac{2J + 1}{(2I+1)(2i+1)} \qquad (8.12)$$

mit $J = I + i + \ell$

I = Kernspin

i = Neutronenspin

ℓ = Bahnspin von Neutron-Kern

Der Beitrag der langsamen Neutronen (0,01 - 20 eV) zu einer Reaktion mit $\ell \neq 0$ ist vernachlässigbar. Die Beträge des Neutronen- und Kernspins von ^{239}Pu sind gleich: I = 1/2 und i = 1/2.

In Tabelle 8.1 sind die von verschiedenen Autoren ermittelten Spinwerten aller uns interessierenden Resonanzen zusammengestellt. Die Werte der 11,9 eV, 14,3 eV und 14,7 eV-Resonanzen sind nur zur Vollständigkeit angegeben, denn der Interferenzeinfluss dieser Resonanzen ist wegen der geringen Grösse ihrer Spaltbreiten relativ klein.

FRASER und SCHWARTZ, 1962, SAUTER und BOWMAN, 1965 und SIMPSON et al., 1971 erhalten die g_J-Werte aus einem Vergleich der im Streu- und Transmissionsexperiment gefundenen Resonanzparameter. Leider ist diese Methode nicht mehr so wirksam, wenn $\Gamma_{\lambda n} << \Gamma_{\lambda T}$, was besonders für die 15,5 eV Resonanz zu trifft.

Tabelle 8.1: J-Werte der Neutron-Resonanzen von ^{239}Pu für E < 20 eV

	Direkte Methode				Indirekte Methode				Interferenz		
E_λ (eV)	Fraser, Schwartz (1962)	Sauter, Bowman (1965)	Simpson et al. (1971)	Chrien et al. (1970)	Melkonian Mehta (1965)	Regier et al. (1960) Cowan et al. (1966)	Toraskur Melkon. (1971)	Wage-mans, Deruytt. (1972)	Vogt (1960)	Sauter Bowman (1965)	Farrell (1968)
< 0						0	0		1		
0,3				1		1	1		0		
7,8	1	1	1		1			1	1		
10,9	1	1	1		1			1	1		
11,9	1	1	1		1			1			
14,3			1		1			1			1
14,7	0	1	1		1			1			1
15,5					1	1		0	1	0	0
17,7	1	1	1		1	1					1

CHRIEN et al., 1970 beobachten mit 0, 3 eV-Neutronen in einem (n, γ)-Experiment eine schwächere γ -Linie, die zu einem bekannten Endzustand mit $J^{\pi} = 2^{+}$ führte. Von den beiden in Frage kommenden Multipolstrahlungen M1 und E2 nehmen sie aus Gründen der Intensität eine M1-Strahlung an.

REGIER et al., 1960 vergleichen die symmetrische mit der asymmetrischen Spaltung für 0, 3 eV-Resonanzneutronen und thermische Neutronen und COWAN et al., 1966 für Neutronen im Bereich 15, 8 - 82, 4 eV. Die letzteren finden eine Gruppenbildung der Verhältnisse der symmetrischen zur asymmetrischen Spaltung $R_{s/a}$ der verschiedenen Resonanzen gemäss dem g_J -Faktor. Ein Vergleich der $R_{s/a}$ - Resultate mit den von Regier et al. gemessenen ergeben die in der Tabelle 8.1 aufgeführten Spinwerte.

TORASKAR und MELKONIAN, 1971 bestätigen qualitativ die Resultate von Regier et al. durch eine Messung sowohl der kinetischen Energieverteilung als auch der Massenverteilung mit den 0, 3 eV - Resonanzneutronen und den 0, 003 - 0, 005 eV Neutronen.

MELKONIAN und METHA, 1965 finden aus der Messung der totalen Energie der Fragmente in Abhängigkeit der Resonanzneutronen die J-Werte. Folgende Annahme liegt zugrunde: Symmetrische Spaltfragmente besitzen eine geringere kinetische Energie als die asymmetrischen und vorzugsweise verläuft die symmetrische Spaltung durch den Spaltkanal mit J = 0 und die asymmetrische mit J = 1.

WAGEMANS und DERUYTTER, 1972 konnten eine signifikante Variation des Verhältnisses der tertiären zur binären Spaltung als Funktion von J für verschiedene Resonanzen feststellen.

VOGT, 1960, SAUTER und BOWMAN, 1965, und FARWELL, 1968, können mittels einer Interferenzformel mit den in der Tabelle 8.1 angegebenen Spinwerte den Spaltquerschnitt beschreiben.

Tabelle 8.1 zeigt, dass die von Vogt angenommenen Spinwerten der 0,3 eV und 15,5 eV - Resonanz teilweise nicht mit denen anderer Autoren übereinstimmt. Daher wird hier der Versuch unternommen, die Spaltquerschnitte mit dem Spin J = 1 für die 0,3 eV - Resonanz und J = 0 für die 15 eV - Resonanz zu beschreiben.

8.4. Auflösungsfunktion

Für den höheren Energiebereich (bis 20 eV) werden die BR2-Messdaten durch die relativ gemessenen am LINAC von DERUYTTER und WAGEMANS, 1972 ergänzt. Sie werden an dem 2200 m/s-Wert der Geraden $\sigma_f^o = 742,5$ b geeicht.

Die Resonanzen (z. B. Fig. 8.2 und 8.3) der Linac-Messkurve werden durch die Ungenauigkeit in der Flugzeitbestimmung (Apparatbreite) und durch die Eigenbewegung der Targetatome (Dopplerbreite) verbreitert. Um die Messkurve mit der nach (8.5) berechneten vergleichen zu können, muss die berechnete σ_f^{be} (E) mit der Auflösungsfunktion R(E-E') gefaltet werden:

$$\sigma_f(E) = \int_0^\infty \sigma_f^{be}(E').R(E-E')dE / \int_0^\infty R(E-E').dE' \quad (8.13)$$

Die entsprechenden Verteilungsfunktionen der Neutronengeschwindigkeiten, die einer Flugzeit zugeordnet sind, haben mehr oder weniger Rechtecks-Gestalt. In Tabelle 8.2 sind die Basisbreiten der drei in Frage kommenden Verteilungen angegeben.

Tab. 8.2: Basisbreiten der Flugzeitverteilungen der Linac-Breiten

	E ≤ 1 eV	E > 1 eV
Neutronenimpulsbreite: Δt_B (/us)	2	0,05
Verbreiterung des Neutronenimpulses durch den Polyäthylen-Moderator: Δt_M (/us)	1,8 / E (eV)	
Kanalbreite: Δt_A (/us) (des Analysators)	5,12	0,16

Die Faltung dieser drei Funktionen wird angenähert durch eine Gaussfunktion mit der Varianz Δ^2_{Ap}, die sich aus der Summe der drei Rechteck-Varianzen zusammensetzt:

$$R_{Ap}(E-E') = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\Delta_{Ap}} \exp\left\{-\frac{(E-E')^2}{\Delta^2_{Ap}}\right\} \qquad (8.14)$$

mit $\int_{\sigma}^{\infty} R_{Ap}(E-E()\,-\,dE' = 1$

Der Einfluss der Eigenbewegung der Targetatome wird ebenfalls durch eine Gaussfunktion $R_{DB}(E-E')$ mit der Dopplerbreite

$$\Delta_{DB} = (4k\,TE/A)^{1/2} \qquad (8.15)$$

mit k = Boltzmannsche Konstante
T = Targettemperatur (hier T = 295 K, keine Berücksichtigung der Bindungseffekte)
A = Massenzahl von ^{239}Pu

berücksichtigt. Die Faltung dieser beiden Gaussfunktionen ergibt

die gesuchte Gaussfunktion:

$$R(E-E') \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta} \exp\left[- \frac{(E-E')^2}{\Delta^2} \right] , \qquad (8.16)$$

mit $\int_0^\infty R(E-E') \, . \, dE' = 1$

und $\Delta^2 = \Delta^2_{DB} + \Delta^2_{Ap}$

oder numerisch

$$\Delta^2 = 4,22\ 10^{-4}\ E + 6,42\ 10^{-6}\ E^2 + 1,98\ 10^{-6}\ (\Delta t_B + \Delta t_A^2)\ E^3$$

8.5 Ergebnisse und Diskussion

Für jeden einzelnen Energiewert E muss die Kehrwertmatrix $(A^{-1})^{-1}$ der komplexen Matrix A^{-1} berechnet werden, hinzu kommt die Faltung mit der Auflösungsfunktion, und darum können die Parameter von (8.5) nicht nach der Methode der kleinsten Quadrate wegen zu langer Computerzeiten optimalisiert werden. Daher wird nur die Stellung der Spaltvektoren $\vec{g}_\lambda$ im Raum der Spaltkanäle (Interferenzbeiträge) und die Parameter der negativen Resonanzen schrittweise optimalisiert, sodass die Interferenzkurve (8.5) die Messkurve zwischen den Resonanzen und im thermischen Bereich (0,07 - 0,1 eV) gut beschreibt. Eine weitere Bedingung ist, dass die Interferenzkurve den aus der Geraden ($\sigma_f = a\,\tau + b$) (Abschn. 6.1) erhaltenen thermischen Wert $\sigma_f^o = 742,5$ b schneidet.

Die Interferenz beeinflusst prozentual am grössten die Spaltquerschnitte zwischen den Resonanzen. Wird eine Messkurve mit einer Breit-Wigner Kurve angepasst und liegt die Mess-

kurve signifikant höher oder tiefer, so spricht man vom konstruktiver oder destruktiver Interferenz. Im Falle antiparalleler bzw. paralleler Stellung zweier Spaltvektoren erhält man maximale konstruktive bzw. destruktive Interferenz.

Figuren 8.1-8.3 zeigen die mit den Parametern von VOGT, 1960 (Tab. 8.3, Gruppe I) berechnete Interferenzkurve. VOGT selbst beschrieb den Spaltquerschnitt nur im Energiegebiet 0,01-10 eV. Die Parameter der Resonanzen höherer Energien bis zu E_λ = 298,1 eV werden von GREEBLER et al., 1966 übernommen. Diese Resonanzen werden mit der Breit-Wigner Formel beschrieben. Die Lage der Spaltvektoren der interferierenden Resonanzen zeigt Fig. 8.4 (Gruppe I).

Ausser den Messwerten und der Interferenzkurve ist in den Figuren eine Breit-Wigner Kurve eingezeichnet, die der Interferenzkurve bis auf die Interferenzbeiträge entspricht.

Zu bemängeln ist die Anpassung im thermischen Bereich (0,07 - 0,1 eV) und zwischen den Resonanzen (11 - 11,9 eV) und (11,9 - 14,3 eV). Die starke destruktive Interferenz ($\vec{g}_8 || \vec{g}_4$) ist auf eine Interferenz der grösseren Resonanzen 11,0 eV und 15,5 eV zurückzuführen.

Bei Annahme anderer Spinwerte für die 15,5 eV und der 0,3 eV-Resonanz, die hier einen kleineren Einfluss wegen der geringen Spaltbreite ausübt, und einer schrittweisen Optimalisierung der Parameter der negativen Resonanz und der Winkel zwischen den Spaltvektoren im Raum der Ausgangskanäle (angenommen: $\Gamma_{1\gamma}$ = 0,040 eV), kann eine bessere Beschreibung der Messkurve erziehlt werden. Siehe hierzu die Figuren 8.5 - 8.7 und 8.4 (Gruppe II) und Tabelle 8.3 (Gruppe II).

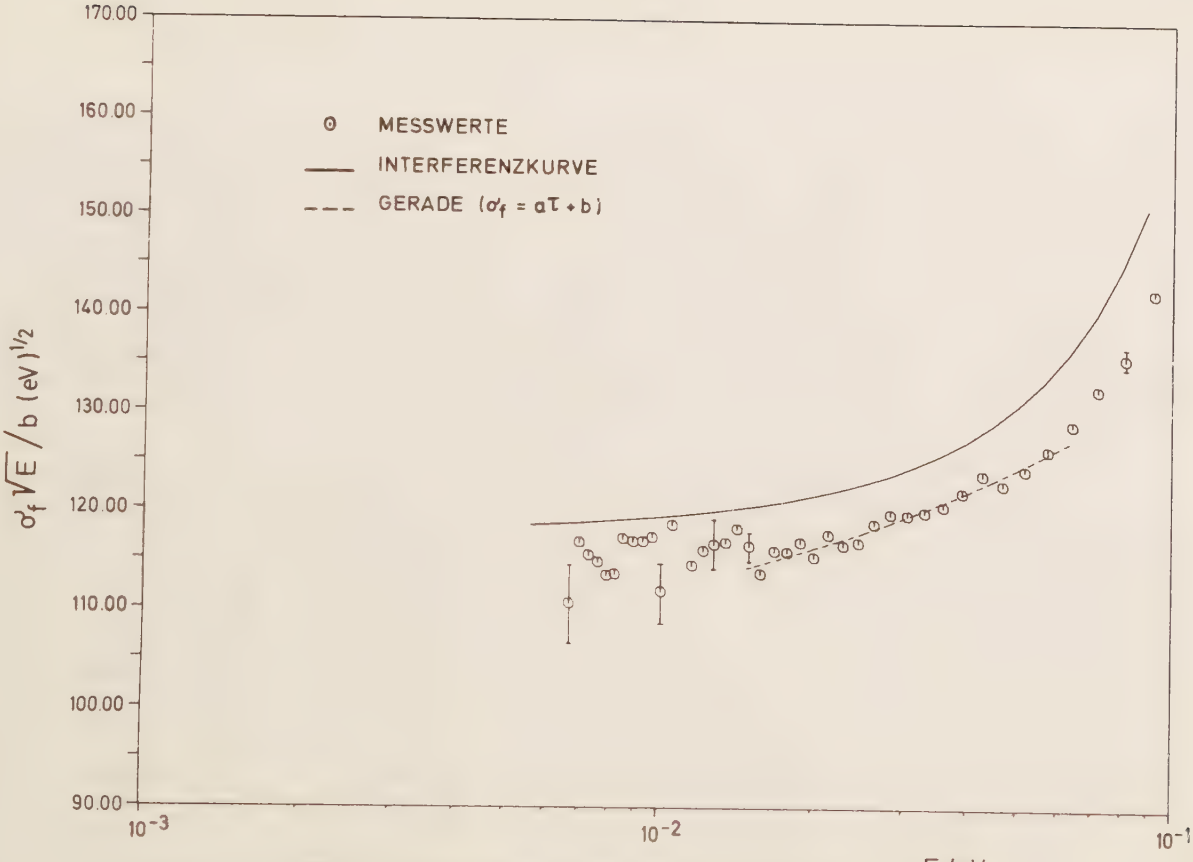

Fig. 8.1 $\sigma_f \sqrt{E}$ ALS FUNKTION VON E (VOGT-PAR. I)

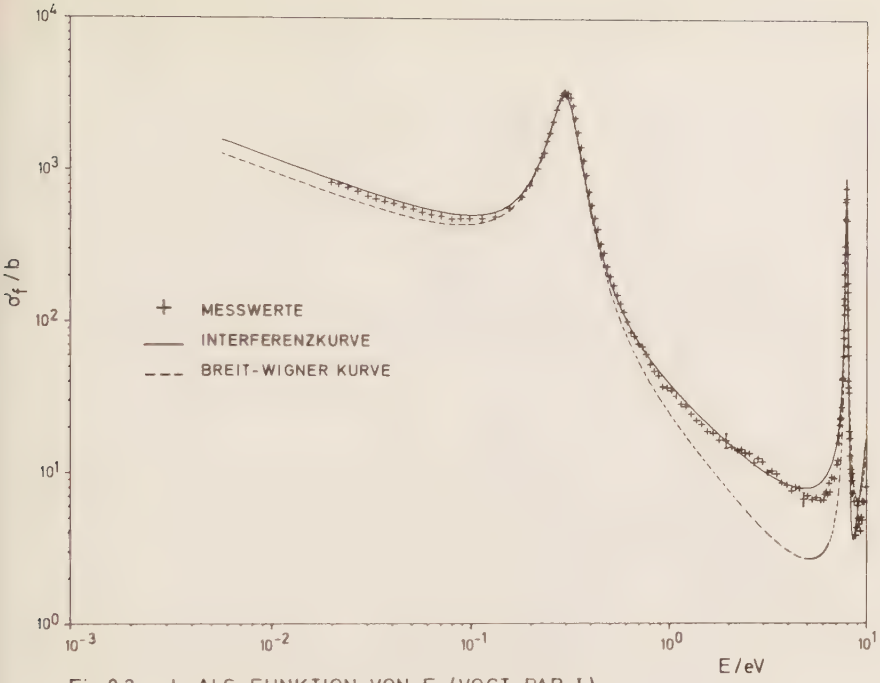

Fig. 8.2 σ'_f ALS FUNKTION VON E (VOGT-PAR. I)

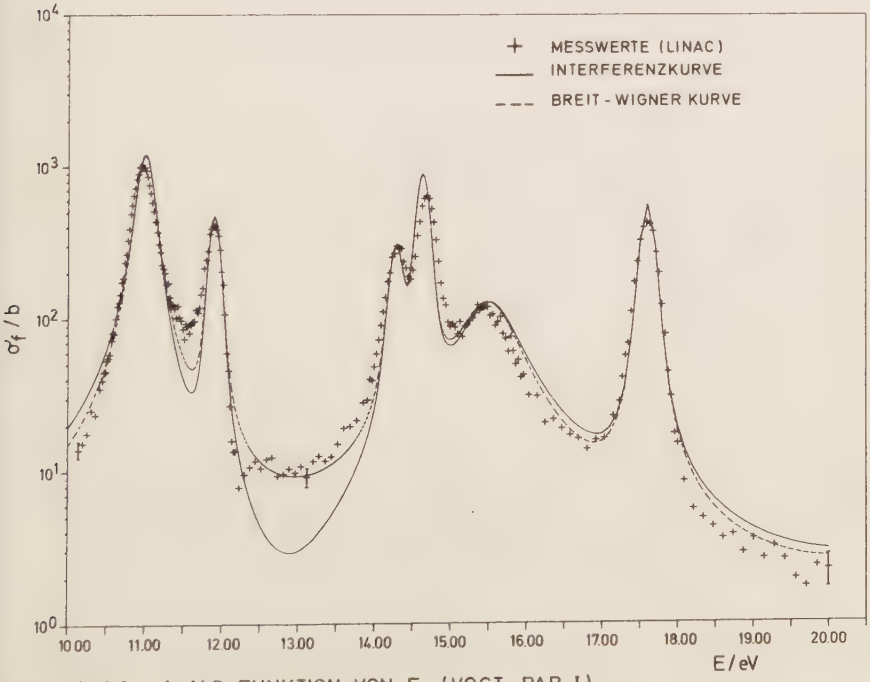

Fig. 8.3 σ'_f ALS FUNKTION VON E (VOGT-PAR. I)

Tabelle 8.3 (I): Resonanz- und Interferenzparameter von ^{239}Pu (Vogt-Parameter)

λ	E_λ (eV)	$2g_J\Gamma_{\lambda n}^o$ (meV)	$\Gamma_{\lambda f}$ (meV)	$\Gamma_{\lambda T}$ (meV)	θ_λ	λ, λ'	$\cos(\theta_\lambda - \theta_{\lambda'})$	J_λ
1	- 1,20	1,156	201	240	0	1,3	- 0,80	1
2	0,296	0,209	55,4	94		1,4	- 1,00	0
3	7,90	0,47	42	80	143,1°	1,8	- 1,00	1
4	11,00	0,83	147	179	180°	3,4	0,80	1
5	11,90	0,464	22	63,97		3,8	0,80	1
6	14,28	0,218	52,5	91,75		4,8	1,00	1
7	14,63	0,863	31,7	72,6				1
8	15,50	0,32	760	800	180°			1
9	17,60	0,572	46,3	87				1

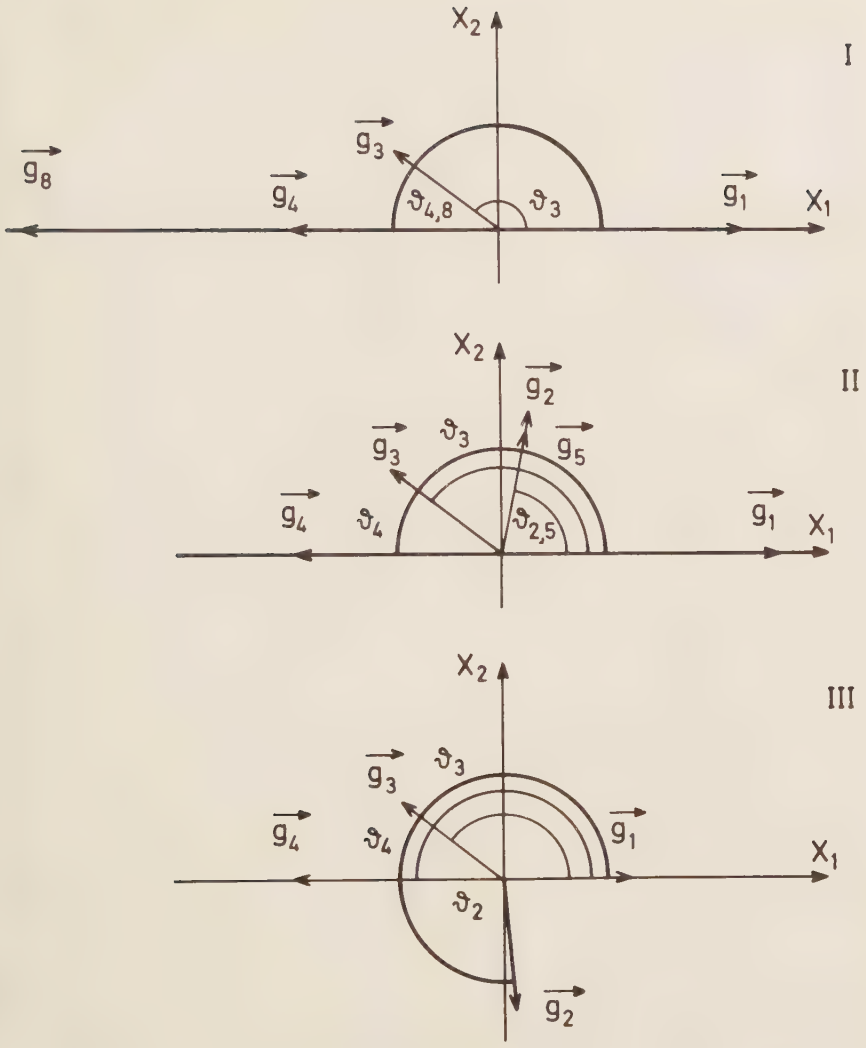

Fig. 8.4 SPALTVEKTOREN $\vec{g}_j$ IM RAUM (X_1, X_2) ZWEIER SPALT - AUSGANGSKANÄLE

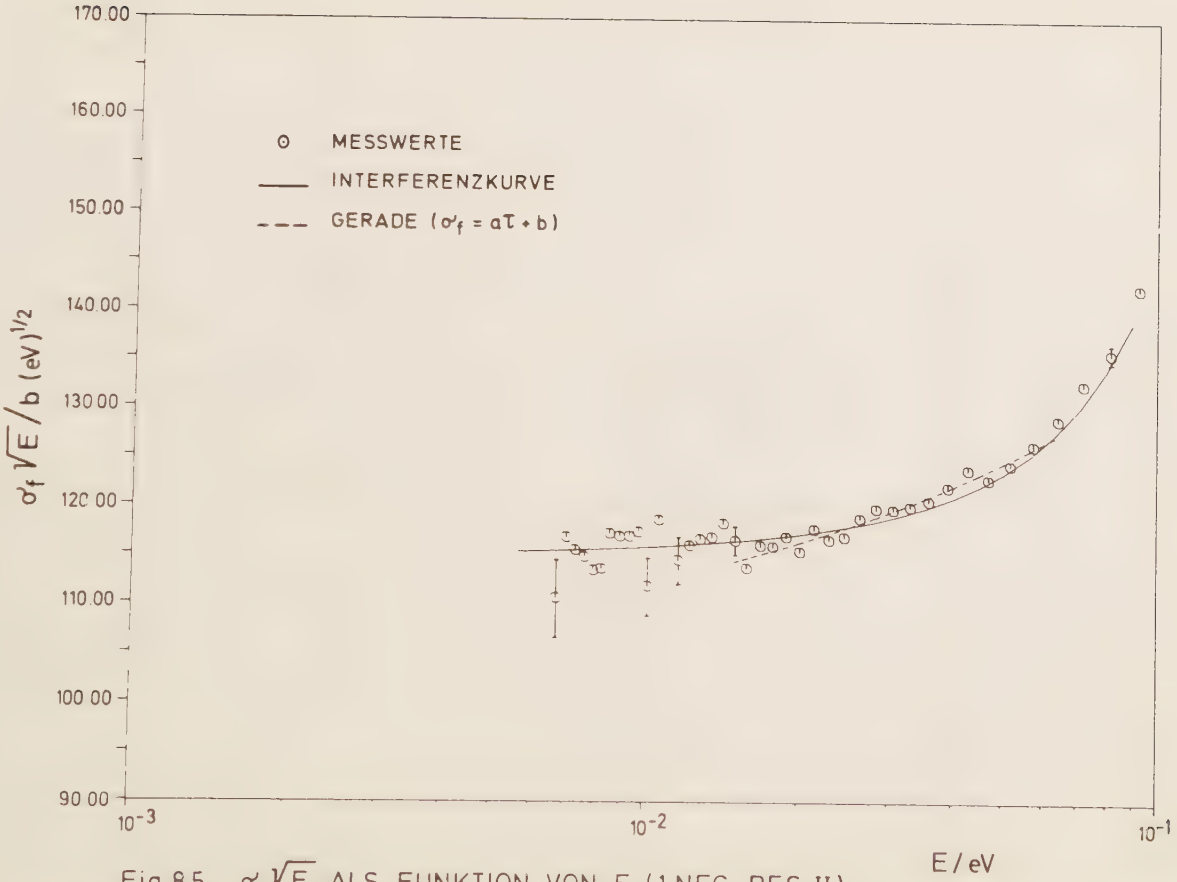

Fig. 8.5 $\sigma_f\sqrt{E}$ ALS FUNKTION VON E (1 NEG. RES. II)

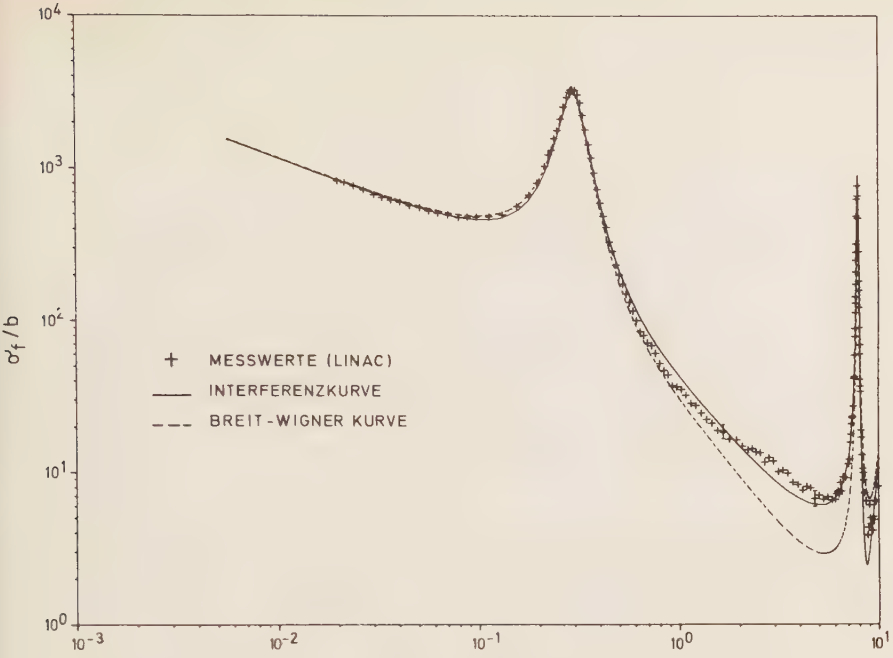

Fig. 8.6 σ_f ALS FUNKTION VON E (1 NEG. RES. II)

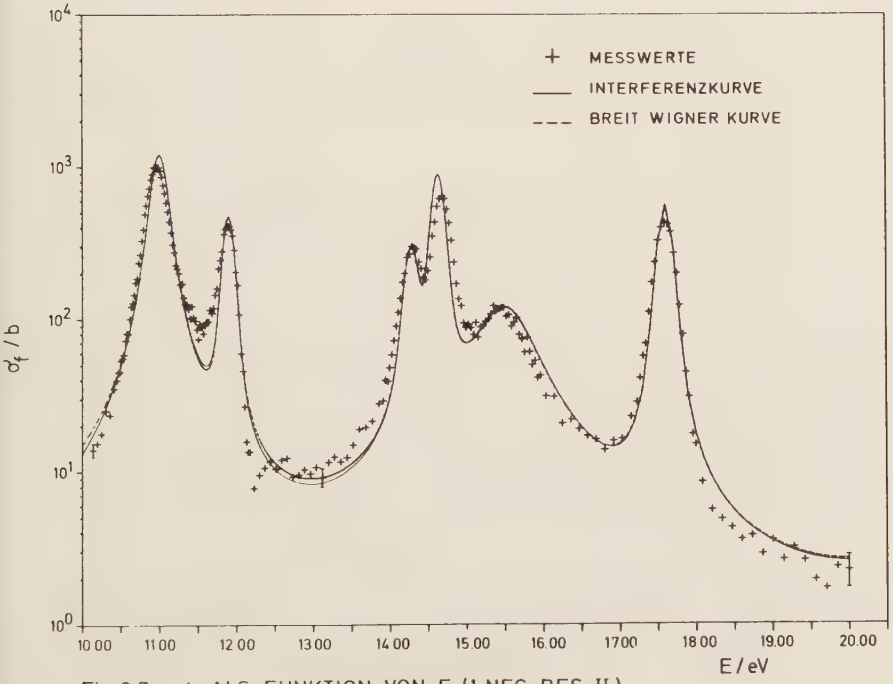

Fig. 8.7 σ_f ALS FUNKTION VON E (1 NEG RES. II)

Tabelle 8.3 (II) Resonanz- und Interferenzparameter von ^{239}Pu (1 neg. Res.)

λ	E_λ (eV)	$2g_J\Gamma_{\lambda n}^o$ (meV)	$\Gamma_{\lambda f}$ (meV)	$\Gamma_{\lambda T}$ (meV)	φ_λ	λ, λ'	$\cos(\varphi_\lambda - \varphi_{\lambda'})$	J_λ
1	- 1,14	1,162	260	300	0°	1,2	0,174	1
2	0,30	0,209	55,4	94	80	1,3	- 0,80	1
3	7,90	0,47	42	80	143,1°	1,4	- 1,00	1
4	11,00	0,83	147	179	180°	1,5	0,174	1
5	11,90	0,464	22	63,97	80°	2,3	0,45	1
6	14,28	0,218	52,5	91,75		2,4	- 0,174	1
7	14,63	0,863	31,7	72,60		2,5	1,00	1
8	15,50	0,301	760,5	801,57		3,4	0,80	0
9	17,60	0,572	46,3	87		3,5	0,45	1
						4,5	- 0,174	

Die Einführung einer weiteren negativen Resonanz mit dem Spin J = 0 ergibt eine bessere Anpassung im thermischen Bereich (Fig. 8.8, 8.9, 8.10 und 8.4 (Gruppe III) und Tab. 8.3 (Gruppe III)). Aus dieser Interferenzkurve wird der 2200 m/s-Wert (Abschn. 6.1) ermittelt. Nur eine Verminderung der Interferenzkurve um 1,8 b (0,24%) genügt, um die Summe der quadratischen Abweichungen im Bereich 0,015 - 0,066 eV zu minimalisieren.

Die Annahme zweier Ausgangskanäle (Spaltkanäle) ist ausreichend (Fig. 8.4). Mit Zunahme der Ausgangskanäle nehmen im allgemeinen die Interferenzbeiträge ab. Stehen alle Spaltvektoren senkrecht zueinander, dann reduziert sich die Interferenzformel (8.5) zu einer normalen Breit-Wigner Formel.

Zusammenfassend lässt sich folgendes sagen:

1. Nur mit dem Spin J = 0 für die 15,5 eV-Resonanz ist eine gute Beschreibung der Messkurve möglich.
2. Auch mit dem Spin J = 1 für die 0,3 - Resonanz lässt sich die Messkurve anpassen.
3. Die beiden Interferenzkurven (Fig. 8.5 und 8.8) liegen im meV-Bereich um etwa 3% niedriger als die von Vogt angegebene (Fig. 8.1), d.h. um maximal 13% niedriger als die Messwerte von GRAMA et al., 1967 im Bereich 2 - 4 meV.
Dagegen durchläuft die Interferenzkurve im Bereich noch kleinerer Energien 0,7 - 2 meV die Messwerte, die hier mit einem grösseren Fehler behaftet sind. Die systematische Streuung dieser Messwerte ist nicht geklärt. Sollte es sich herausstellen, dass die Messwerte im ganzen subthermischen Bereich höher als die Interferenzkurve liegen, dann wäre es möglich, genauere Informationen über die negativen Resonanzen zu erhalten, denn eine daraus folgende Verschiebung der negativen Resonanzen in Richtung zur positiven Neutronenenergie würde die Kurvenformempfindlichkeit dieser Resonanzen im subthermischen Bereich erhöhen.

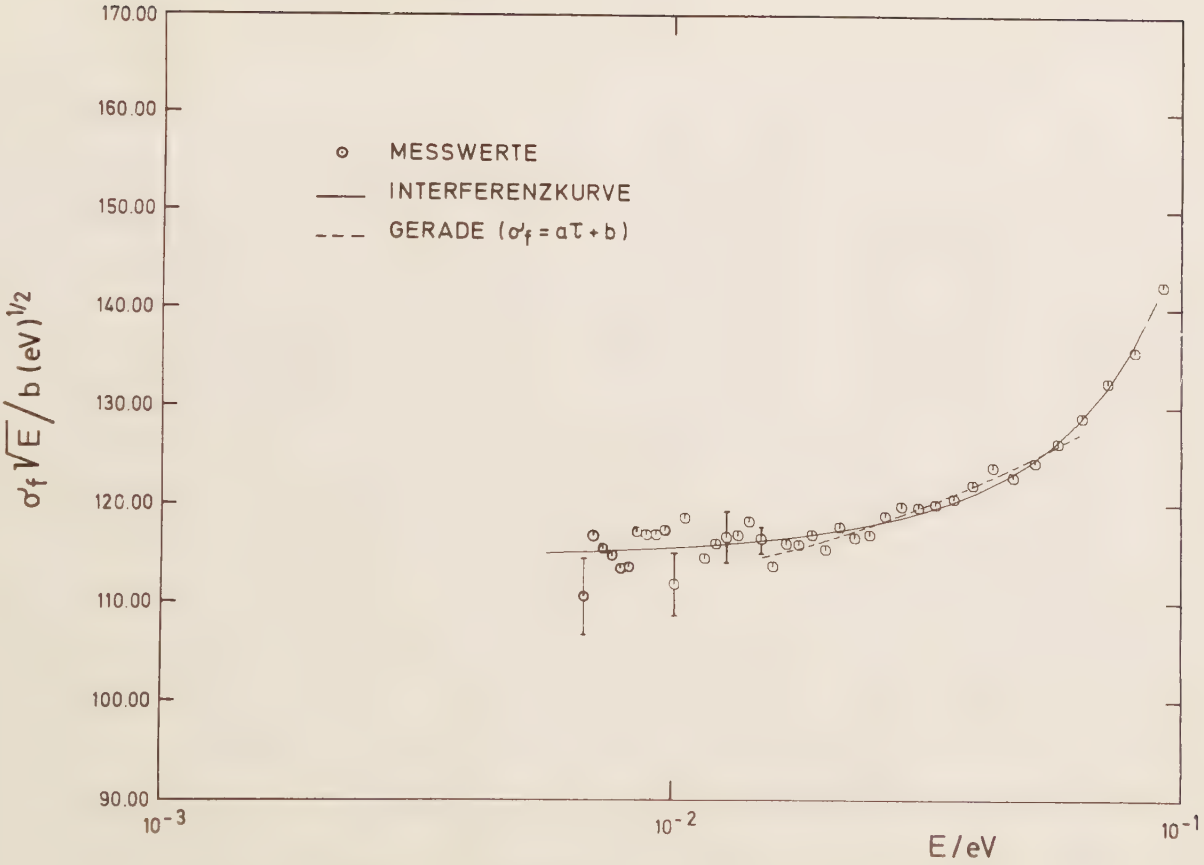

Fig. 8.8 $\sigma_f\sqrt{E}$ ALS FUNKTION VON E (2 NEG. RES. III)

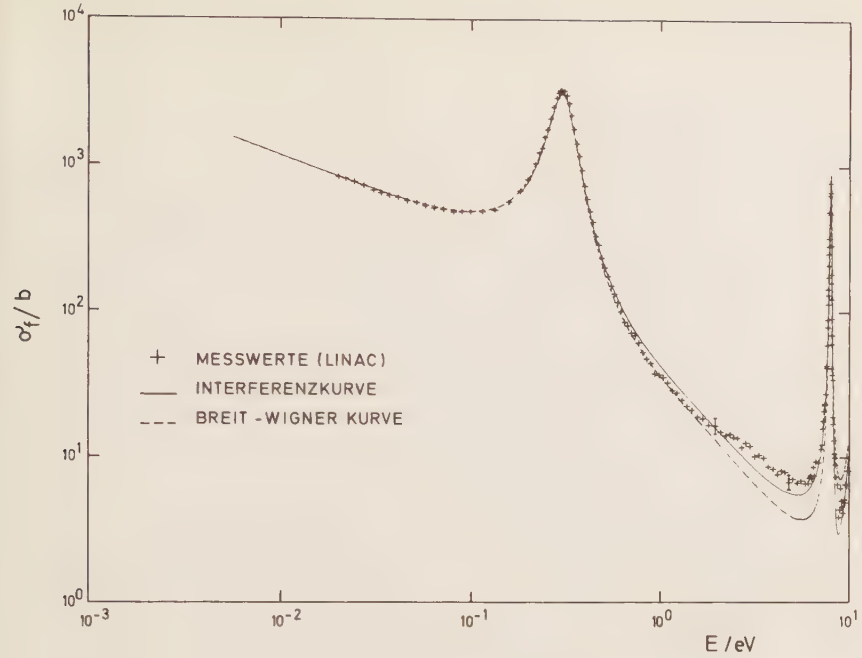

Fig. 8.9 σ'_f ALS FUNKTION VON E (2 NEG. RES. III)

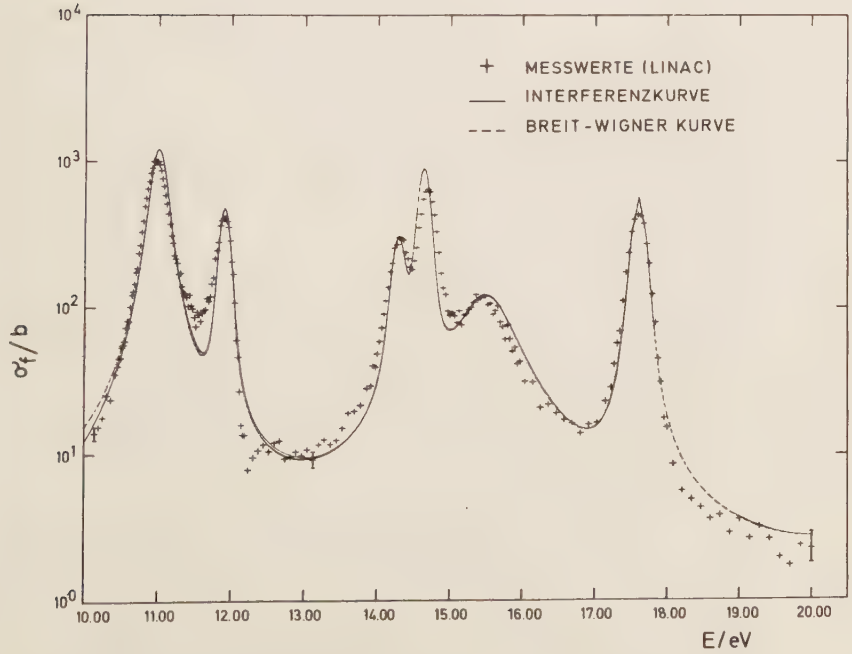

Fig. 8.10 σ'_f ALS FUNKTION VON E (2 NEG. RES. III)

Tabelle 8.3 (III) Resonanz- und Interferenzparameter von ^{239}Pu (2 neg. Res.)

λ	E_λ (eV)	$2g_J\Gamma^o_{\lambda n}$ (meV)	$\Gamma_{\lambda f}$ (meV)	$\Gamma_{\lambda T}$ (meV)	θ_λ	λ, λ'	$\cos(\theta_\lambda - \theta_{\lambda'})$	J_λ
0	- 2,00		1356	1396		1, 2	0,087	0
1	- 0,53	0,50	40	80	0°	1, 3	- 0,80	1
2	0,30	0,209	55,4	94	275	1, 4	- 1,00	1
3	7,90	0,47	42	80	143,1°	2, 3	- 0,67	1
4	11,00	0,83	147	179	180	2, 4	- 0,087	1
5	11,90	0,464	22,0	63,97		3, 4	0,80	1
6	14,28	0,218	52,5	91,75				1
7	14,63	0,863	31,7	72,60				1
8	15,50	0,301	760,5	801,57				0
9	17,60	0,573	46,3	87				1

LITHIUM

9. Einleitung

Über viele Messungen des thermischen Absorptionsquerschnittes von natürlichem Lithium mit der Reaktion $^{6}Li(n,\alpha)^{3}H$ ÷ 4, 8 MeV wird im BNL 325 (1965) berichtet. Alle Ergebnisse sind heute unsicher und bedürfen einer Neubestimmung, denn die Isotopen-Mischungsverhältnisse der Proben sind nicht genau definiert gewesen.

Die relative Häufigkeit von ^{6}Li in natürlichem Lithium wird normalerweise mit 7, 42% (Hb. of Chem. and Phys., 1970) angegeben. Es hat sich herausgestellt, dass die Isotopen-Mischungsverhältnisse sowohl vom Fundort als auch von der chemischen Behandlung abhängig sind. CAMERON, 1955 fand Unterschiede von etwa 4% im ^{6}Li-Gehalt der vom Handel angebotenen Li-Proben. WAGNER et al., 1954 konnte den ^{6}Li-Gehalt durch mehrere Fällungen reduzieren von 7, 4% auf 6, 65% (10% Untersch.).

Für thermische Neutronenenergien und eventuell bis zu 100 keV wird der Absorptionsquerschnitt der $^{10}B(n,\alpha)$-Reaktion weiterhin als primärer Neutronenstandard seinen Platz behaupten: Der Absorptionsquerschnitt ist fast um den Faktor 4 grösser als der der $^{6}Li(n,\alpha)$-Reaktion und seine Unsicherheit sehr klein (0, 13% ; Abschn. 2). In der Praxis kann Bor als Detektormaterial im gasförmigen, flüssigen und festen Zustand gebraucht werden. Dagegen hat $^{6}Li(n,\alpha)$ gewisse Vorteile: grösserer Q-Wert, weniger neutroneninduzierte Nebenreaktionen und keine Resonanzen (einfacher Verlauf des Querschnittes) bis zu 100 keV (DERUYTTER, 1970).

RAE, 1970 gibt nur noch drei thermische Absorptionsquerschnitte für ^{6}Li + n (Tab. 9.1) an.

Tab. 9.1: Thermische Absorptionsquerschnitte der $^{6}Li(n,\alpha)$-Reaktion (* Fehlerangabe von Rae, 1970)

Autoren	$\sigma^{o}_{n,\alpha}$ (b)
MEADOWS, 1970	936 ± 4
BECKER et al., 1970	$944 \pm 19^{*}$
UTTLEY, DIMENT, 1970	940 ± 8

Die Resultate einzelner Messungen von MEADOWS, 1970 an angereichertem Lithium liegen zwischen den Werten 931 und 946 b. Eine nähere Beschreibung der integralen Messung (BECKER et al., 1970) wird im Abschn. 14 gegeben. UTTLEY und DIMENT, 1970 konnten die Messwerte des totalen Wirkungsquerschnittes von ^{6}Li im Gebiet 70 eV bis 5 keV mit $\sigma_T = 149,5/\sqrt{E} + 0,696$ b beschreiben, wobei der $1/\sqrt{E}$-Term den (n,α) und der konstante Term den elastischen Streuquerschnitt darstellt. Eine Extrapolation des $1/\sqrt{E}$-Termes ergibt den oben tabellierten Wert bei $E_o = 0,0253$ eV.

Nach DERUYTTER, 1972 sollen die Fehlerangaben von MEADOWS und UTTLEY, DIMENT auf etwa 1% erhöht werden.

Die Messungen zur Bestimmung des totalen Wirkungsquerschnittes nach der Transmissionsmethode an natürlichem Lithium und angereichertem ^{6}Li werden in den nächsten Abschnitten beschrieben.

10. Transmissionsmethode

Das Prinzip der Transmissionsmethode ist einfach: die Zahl der durchgelassenen Neutronen einer Li-Probe wird mit der einer Leerprobe verglichen.

Die Transmissionsmethode hat den grossen Vorteil, dass sie unabhängig von anderen Referenzwirkungsquerschnitten den totalen Wirkungsquerschnitt liefert. Nachteilig ist natürlich, dass sie nur den t o t a l e n Wirkungsquerschnitt bestimmt, d.h. die Wirkungsquerschnitte der Nebenreaktionen, wie im vorliegenden Fall die Streuquerschnitte, müssen bekannt sein.

Der totale Wirkungsquerschnitt von ^{6}Li setzt sich aus drei Anteilen zusammen: dem (n, α)-Reaktionsquerschnitt $\sigma_{n,\alpha}$, dem (n, γ)-Einfangquerschnitt $\sigma_{\gamma}(^{6}Li)$ und dem Streuquerschnitt $\sigma_{s}(^{6}Li)$ und der von ^{7}Li aus dem Einfangsquerschnitt $\sigma_{\gamma}(^{7}Li)$ und dem Streuquerschnitt $\sigma_{s}(^{7}Li)$. Beide Einfangquerschnitte sind gegenüber den Absorptionsquerschnitten von ^{6}Li und ^{nat}Li (natürliche ^{6}Li, ^{7}Li-Zusammensetzung) zu vernachlässigen.

Die zwei zur Messung benutzten Li-Proben bestehen aus in schwerem Wasser gelöstem Lithiumsulfat. Schweres Wasser hat gegenüber normalem Wasser einen kleineren totalen Wirkungsquerschnitt. Als Probenhalter werden Quarzküvetten vorgezogen, sie sind für Neutronen fast durchlässig sind.

Eine als Leerprobe benutzte Quarzküvette ist mit schwerem Wasser und eine andere mit Helium (Reinheitsgrad von He 99,9996 mol %) unter einem Druck von 730 Torr gefüllt, um einer eventuellen Luftzufuhr vorzubeugen. Das Verhältnis des makroskopischen Wirkungsquerschnittes des Heliums zu dem des schweren Wassers ist kleiner als 4.10^{-5} und daher ist der Einfluss des Heliums auf die Neutronenmessung unwesentlich. Die zwei Leerproben ermöglichen die Korrektur hinsichtlich der zwei unterschiedlichen D_2O-Konzentrationen der Li-

Probe und der D_2O-Probe zu berechnen.

Die Neutronenenergie wird mit der im Abschn. 2 beschriebenen Flugzeitmethode gemessen.

11. Experimentelle Anordnung und Verfahren

Zur Messung wird dieselbe Chopperanlage benutzt, wie sie im Abschnitt 4.1 beschrieben und in Fig. 4.1 skizziert ist.

In der Mitte des Flugweges befindet sich der Li-Probenwechsler mit den 4 Proben, die abwechselnd in den Neutronenstrahl gedreht werden.

Die Neutronen werden von einem gegenüber gestreuten Neutronen gut abgeschirmten BF_3-Zählrohr (20^{th} Century 12EB70) nachgewiesen; die Impulse gelangen über einen ladungsempfindlichen Vorverstärker, linearen Hauptverstärker und beim Überschreiten einer geeignet eingestellten Diskriminatorschwelle in den Flugzeitanalysator, wo sie hinsichtlich ihrer Ankunftszeit registriert werden.

Ein Neutronenflussmonitor, bestehend aus einer 4π Spaltkammer, Vor- und Hauptverstärker, Diskriminatoreinheit und Zählwerk mit Impulsvorwahl steuert die Messzeit. Hierdurch können Neutronenflussschwankungen des Reaktors ausgeglichen werden. Bei Erreichen einer vorher eingestellten Anzahl zu registrierender Neutronen stoppt der Monitor die Messung. Danach folgt das Auslesen des Flugzeitspektrums auf Magnetband. Kontrolldaten wie die Messzeit, die Anzahl der Monitorimpulse, der Chopperimpulse und der Detektorimpulse werden auf Lochstreifen ausgegeben. Angaben zur Identifizierung der Messungen wie Probennummer, Anzahl der Messzyklen und die Art der Messung (mit oder ohne Kadmiumblech im Neutronenstrahl zur Bestimmung des Untergrundes) werden sowohl auf dem Magnetband als auch auf dem Lochstreifen notiert. Schliesslich wechselt die nächste

Probe in den Neutronenstrahl und die Messung startet von Neuem.

Die Rotordrehzahl ist sehr stabil, sie beträgt etwa 40 s^{-1}, die gemessene Flugweglänge von Rotormitte zur Zählrohrmitte ist L_o = 2008,0 ± 0,2 mm und die eingestellte Kanalbreite des Flugzeitanalysators Δt_A = 16 /us.

Die Stabilität des BF_3-Zählers und des Monitors wird durch Registrieren ihrer Impulshöhenspektren während der ganzen Messungen überwacht. Zur Vermeidung von Pile-up Impulsen im BF_3-Zähler wird der kleinere (1 x 1 cm^2) von den zwei zur Verfügung stehenden Kollimatoren (Abschn. 4.1) benutzt.

Über längere Zeit wird der strahlunabhängige Neutronenuntergrund und die Anzahl der Störimpulse gemessen. Die Anzahl ist so gering, dass der Einfluss auf die Messungen vernachlässigbar ist.

12. Herstellung und Eigenschaften der Proben

Figur 12 zeigt schematisch den Gang der im ZBKM ausgeführten Präparation der Li_2SO_4-Lösungen und die an ihnen vorgenommenen Analysen zur Definition der Lösung wie Isotopenzusammensetzung, Verunreinigung und Konzentration.

Die Konzentrationen können gravimetrisch gemessen werden. Gründliche Untersuchungen von PAUWELS et al., 1967 und 1968 ergeben eine Übereinstimmung der nach vier Methoden - zwei Säure - Base Titrationen mit verschiedenen Säuren und zwei quantitative Umsetzungen, einmal zu Lithiumsulfat und das andere Mal zu Lithiumcarbonat, mit anschliessender Wägung - gefundenen Konzentrationen einer 0,1-molaren Lithiumhydroxid-Lösung von ± 0,02%.

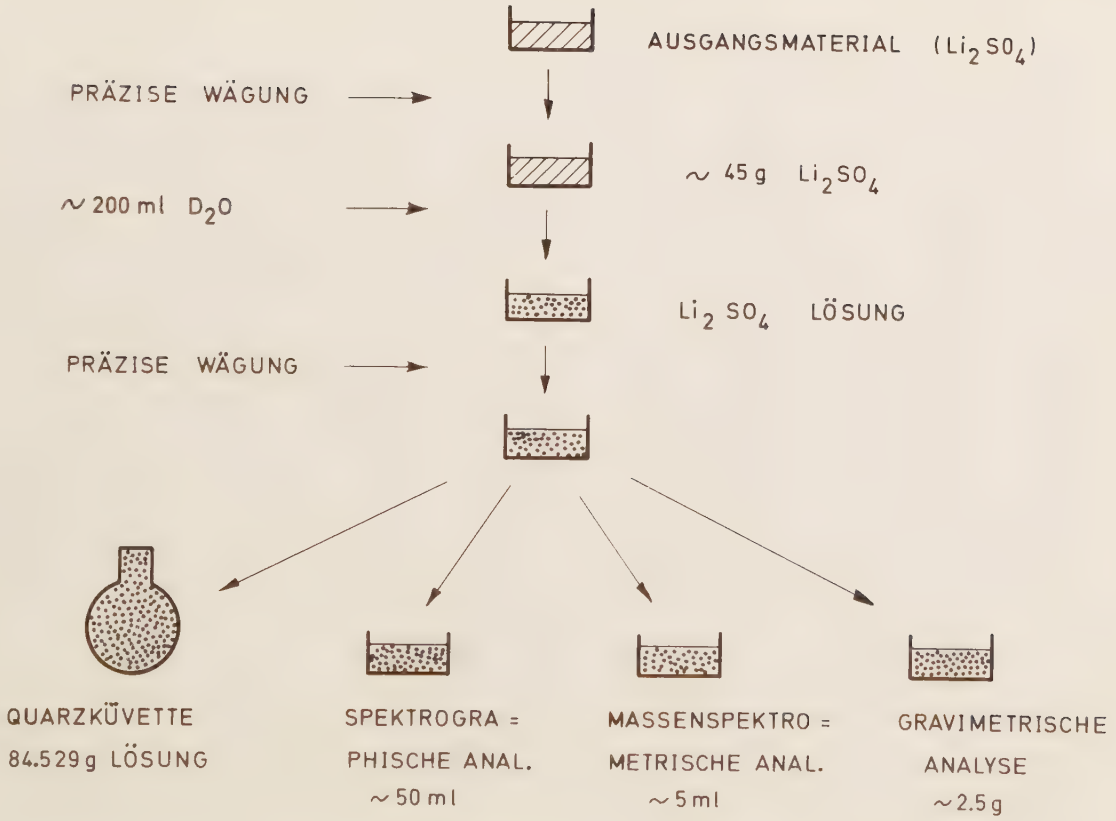

FIG. 12 SCHEMA DER PROBENHERSTELLUNG VON Li_2SO_4 UND DER ANALYSEN

Nach Fig. 12 werden die Ausgangsmengen der Lösung und eine kleinere Menge nach der Herstellung, wobei die Lösung verdampft und langsam bei einer Temperatur von 750°C bis zu einem konstanten Gewicht ausgetrocknet wird, präzise gewogen. Die Ergebnisse der beiden Wägungen differieren um 0,02%.

Die spektrographisch gemessenen Verunreinigungen (Tab. 12.1 und 12.2) sind gering (0,10% bzw. 0,009% der Gewichtskonzentration der $^{6}Li_2SO_4$ - bzw. $^{nat}Li_2SO_4$ -Lösung).

Speziell werden die Elemente B, Cd und die seltenen Erdmetalle (vorwiegend Gd) untersucht. Sie zeichnen sich durch grosse Neutronen-Wirkungsquerschnitte aus. Ihr Einfluss auf die Neutronenmessung ist jedoch kleiner als 0,01%.

Die massenspektrometrischen Messungen sind nur teilweise ausgeführt worden. Sie sind schwierig, besonders für die natürliche Li-Probe. Auch nach längerem Erhitzen des Filaments (Probenträger) ohne Messprobe diffundieren Lithiumverunreinigungen während der eigentlichen Messung aus dem Filament. Messungen mit Eichproben verschiedenster Isotopenzusammensetzung stehen noch aus. Dies ist der Grund dazu, dass der vorläufige Fehler des ^{6}Li-Gehaltes der ^{nat}Li-Probe nur auf $\pm$ 2% angegeben werden kann.

Tabelle 12.3 enthält alle Ergebnisse der einzelnen Analysen sowie die Abmessungen der Probenhalter und aller Proben.

Die vier Quarzküvetten selbst sind auf Unterschiede hinsichtlich ihrer Neutronentransmission untersucht worden. Die unterschiedlichen Quarzdicken haben einen geringen Einfluss auf die Angabe des Li-Absorptionsquerschnitts, für die ^{6}Li-Probe kleiner als 0,03%. Der Mittelwert der Transmission aller vier Quarzküvetten beträgt $\overline{T} = 92,01 \pm 0,20$. Die vier Küvetten sind somit im Rahmen der erforderlichen Genauigkeit als gleich anzusehen.

Tab. 12.1: Spektrographische Analyse der $^{6}Li_2SO_4$-Lösung (nd bedeutet: nicht nachgewiesen, d.h. die Photoplatten zeigten keine Linien).

Elemente	Detektorgrenze ppm (Mass.) von Li	Verunreinigung ppm (Mass.) von Li
Na	---	114
K	---	54
Rb	89	nd
Cs	89	nd
Mg	---	570
Ca	---	120
Sr	89	nd
Ba	44	nd
B	36	nd
Al	---	30
Si	---	36
Ta	---	nd
Cr	---	36
Mn	---	60
Fe	12	nd
Mo	16	nd
W	---	nd
Cn	12	nd
Ag	6	nd
Cd	36	nd

Tab. 12.2: Spektrographische Analyse der $^{nat}Li_2SO_4$-Lösung (nd bedeutet: nicht nachgewiesen, d.h. die Photoplatten zeigten keine Linien)

Elemente	Detektorgrenze ppm (Mass.) von Li	Verunreinigung ppm (Mass.) von Li
Na	---	32
K	36	nd
Rb	69	nd
Cs	69	nd
Mg	---	87
Ca	---	32
Sr	69	nd
Ba	69	nd
B	23	nd
Al	---	23
Si	23	nd
Ta	---	nd
Cr	9	nd
Mn	9	nd
Fe	18	nd
Mo	23	nd
W	---	nd
Cu	9	nd
Ag	5	nd
Cd	23	nd

Tab. 12.3: Daten zur Definition der Lösungen und Probenhalter

Proben-Nr.	Inhalt	Massengehalt C Li_2 mg/g	Massengehalt C Li_2SO_4 mg/g	Atom- bzw. Molekülmasse m Li u	Atom- bzw. Molekülmasse m Li_2SO_4 u	Dichte der Lösung ρ (20° C) g/cm^3	Probendicke d cm	Küvettendicke mm	rel. Häufigkeit von ^6Li %
1	$^6Li_2SO_4$ + D_2O	1,6400 ±0,0025	14,714 ±0,022	6,025	108,11	1,1196 ±0,0005	3,9942 ±0,0010	4,131 ±0,0010	99,05 ±0,10
2	He						3,9933 ±0,0010	4,086 ±0,010	
3	$^{nat}Li_2SO_4$ + D_2O	21,425 ±0,032	169,72 ±0,25	6,939	109,94	1,2683 ±0,0005	3,9969 ±0,0010	4,102 ±0,010	7,48 ±0,15
4	D_2O					1,1055 ±0,0005	3,9904 ±0,0010	4,127 ±0,010	

13. Auswertung der Messergebnisse

Die Flugzeitspektren (Fig. 13.1-3) sind zur Erzielung einer besseren Statistik wiederholt gemessen worden und zwar: $^{6}Li_2SO_4$-Lösung 37 mal, $^{nat}Li_2SO_4$-Lösung 36 mal, D_2O 38 mal, He 34 mal; die Untergrundspektren (Cd-Blech im Neutronenstrahl): $^{6}Li_2SO_4$-Lösung 16 mal, $^{nat}Li_2SO_4$-Lösung 17 mal, D_2O 15 mal, He 20 mal. Die Figuren zeigen nur die Messkurve der $^{nat}Li_2SO_4$-Probe, denn die der $^{6}Li_2SO_4$-Probe ist dieser ähnlich.

Die gemessenen Kanalinhalte werden hinsichtlich der Totzeit nach der folgenden Formel (siehe A1) korrigiert:

$$N_n = \frac{N^u_n}{1 - (N^u_{n-1} + N^u_n)/2\, n_s} \qquad (13.1)$$

mit N^u_{n-1} bzw. N^u_n = der gemessene Inhalt des Kanales n-1 bzw. n

n_s = die Anzahl der Startimpulse des Analysators pro Einzelmessung

N_n = der totzeitkorrigierte Inhalt des Kanales n

Die Messergebnisse werden statistisch getestet. Sei $\overline{N^s}$ der Mittelwert der Summen $N^s = \sum_n N_n$ der Messungen einer Probe und $s(N^s)$ die Standardabweichung. Fortgelassen werden die Messungen für die gilt: $N^s > \overline{N^s} + 3\, s(N^s)$ oder $N^s < \overline{N^s} - 3\, s(N^s)$. Diese Ungleichungen besagen nichts weiteres, als dass die fortgelassenen Messungen mit nur einer Wahrscheinlichkeit bei Annahme einer Normalverteilung von etwa 0,3% vorkommen. Nur eine Messung der He-Probe genügte diesen Ungleichungen.

Die Kanalinhalte aller Messungen einer Probe sowie des zugehörigen Untergrunds werden arithmetisch gemittelt, diese Mittelwerte sind in Figur 13.4-6 dargestellt. Mit der Differenz (der Kanalindex n ist weggelassen):

$$N = Z/m - Z'/m' \qquad (13.2)$$

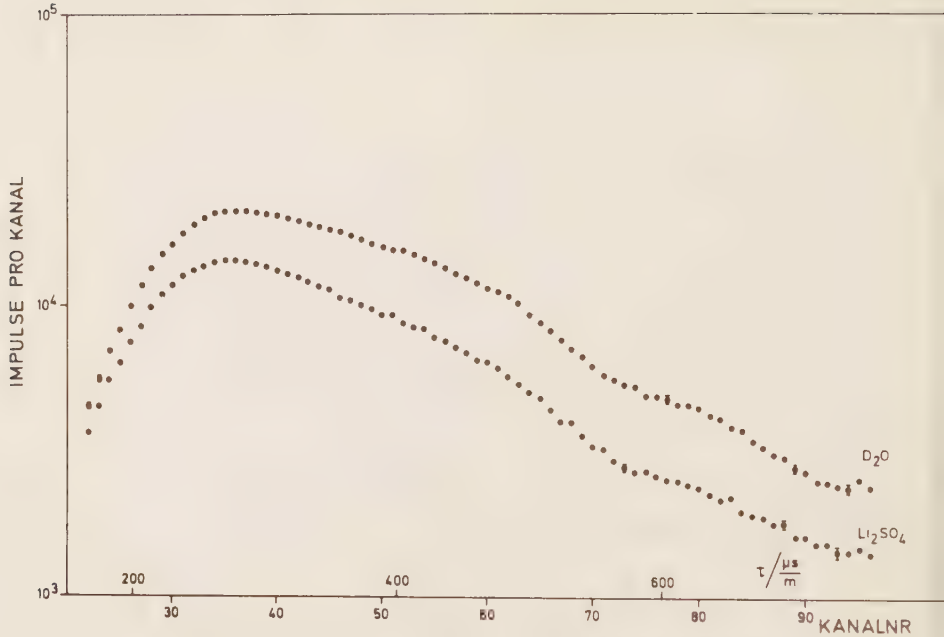

Fig.13.1 EINZELMESSUNG EINES FLUGZEITSPEKTRUMS (D_2O, Li_2SO_4)

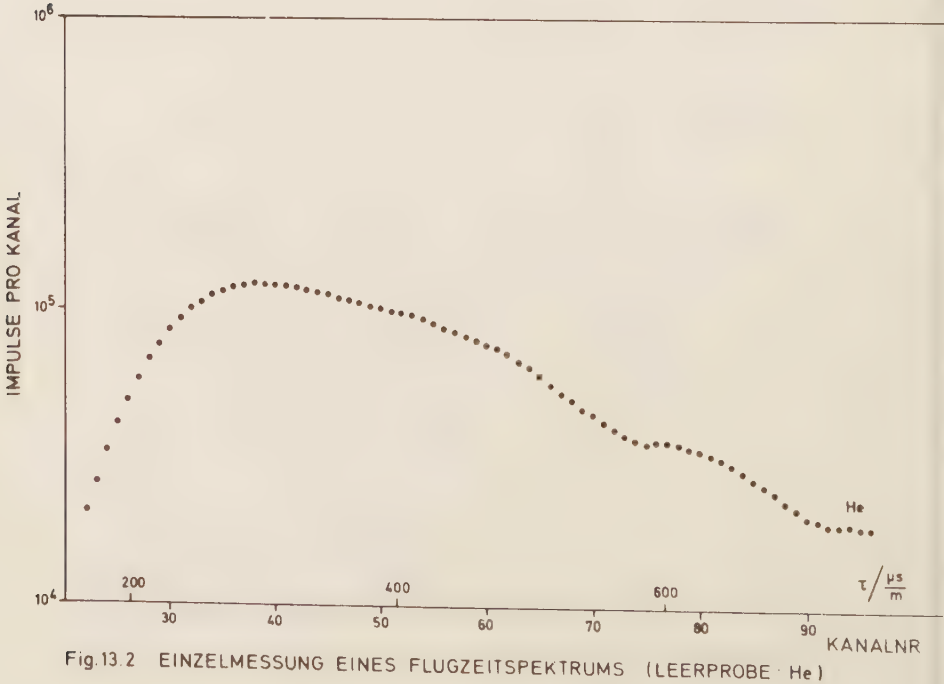

Fig.13.2 EINZELMESSUNG EINES FLUGZEITSPEKTRUMS (LEERPROBE · He)

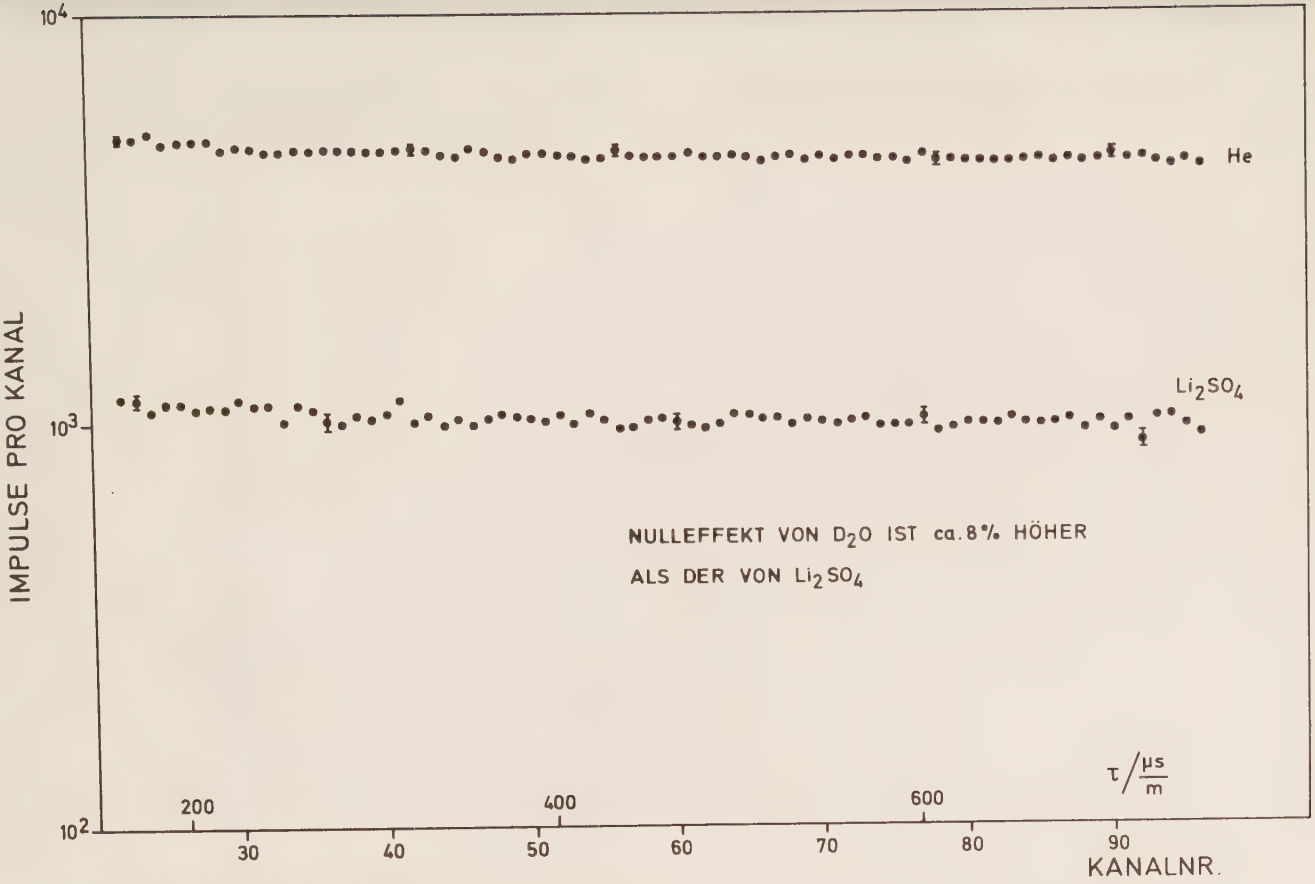

Fig. 13.3 EINZELMESSUNG DES UNTERGRUNDES (He, Li_2SO_4)

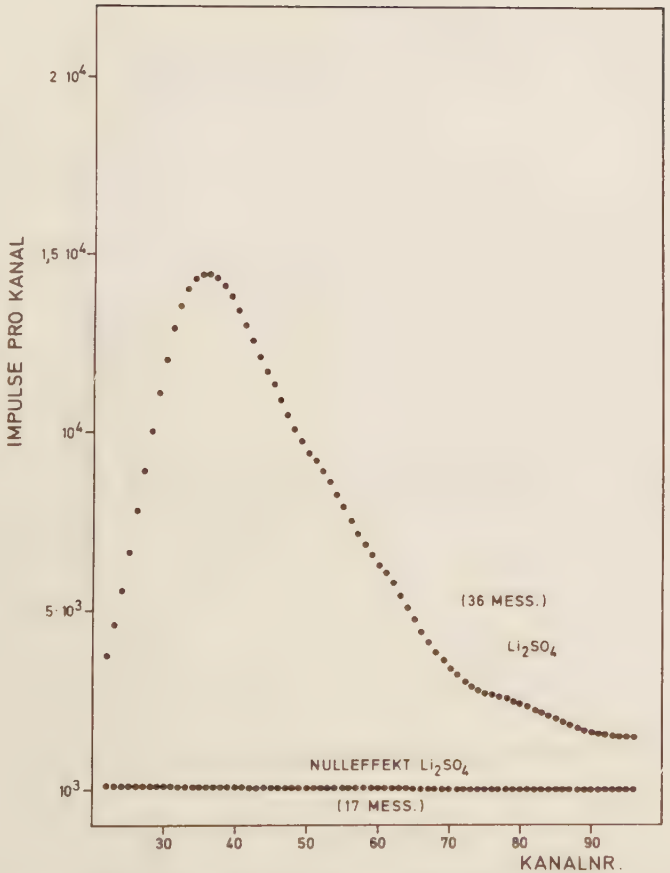

Fig. 13.4 GEMITTELTES FLUGZEITSPEKTRUM (Li_2SO_4)

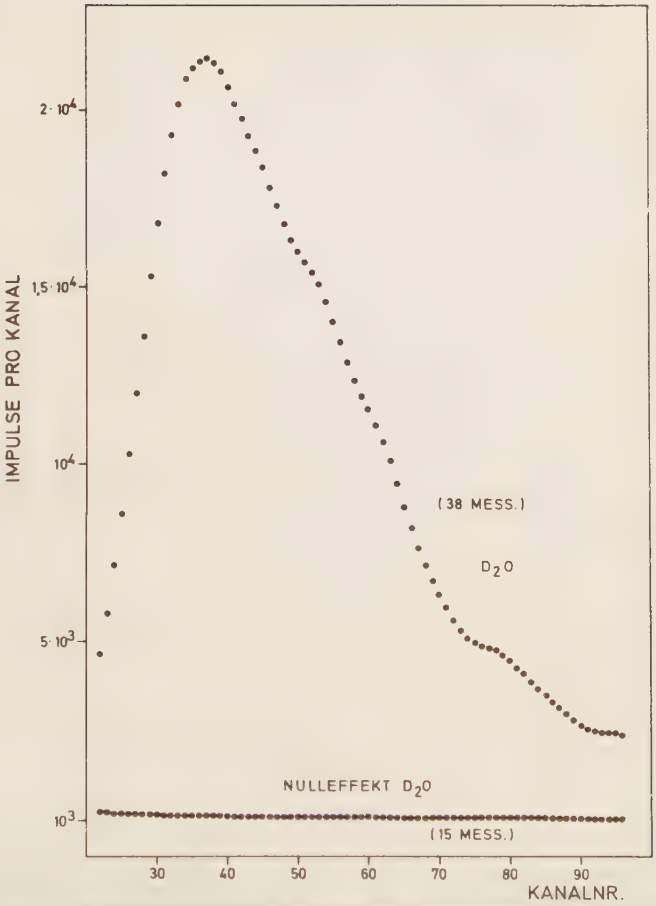

Fig. 13.5 GEMITTELTES FLUGZEITSPEKTRUM (D_2O)

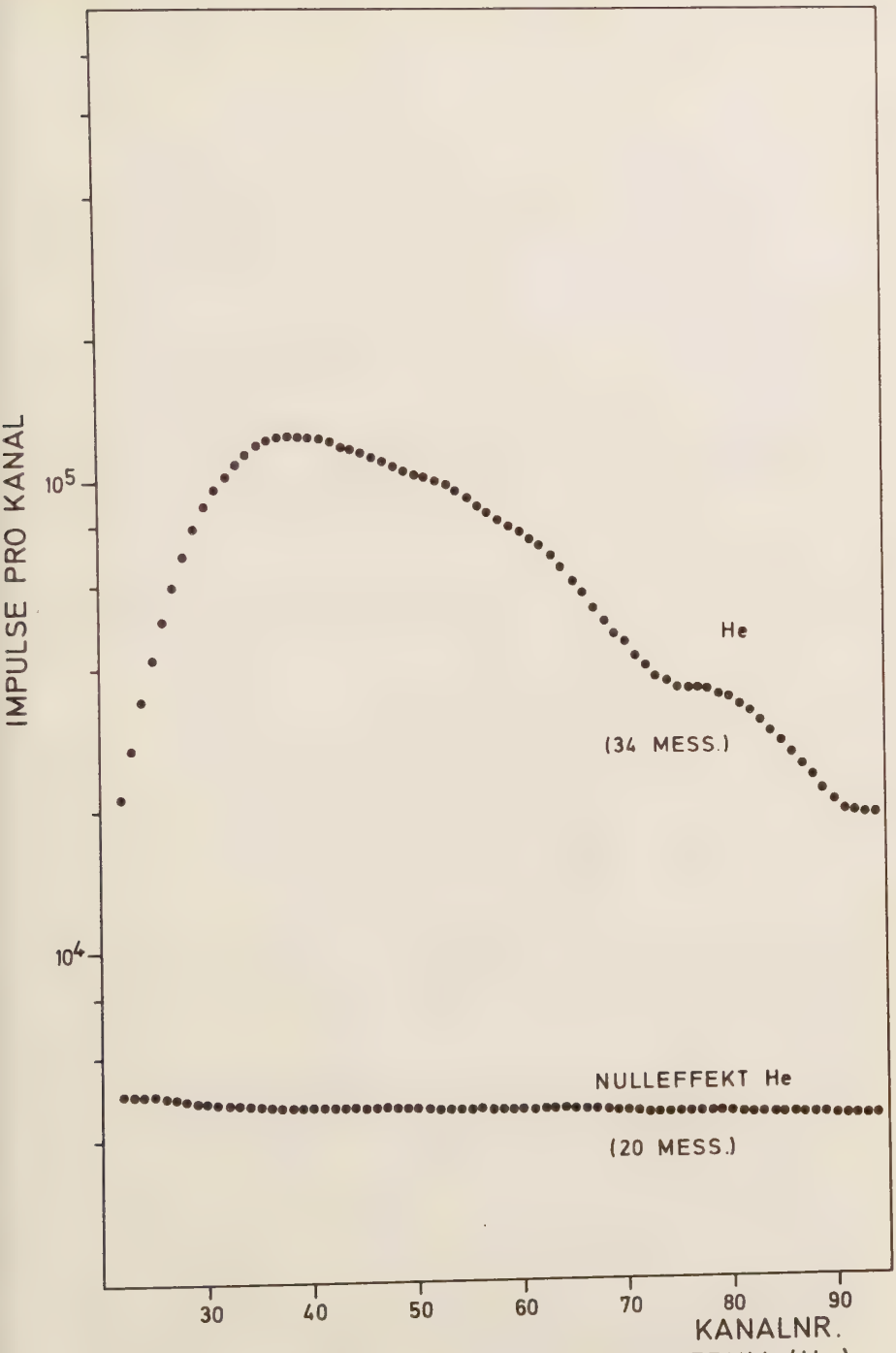

Fig. 13.6 GEMITTELTES FLUGZEITSPEKTRUM (He)

mit Z bzw. Z' = die Summe über alle Kanalinhalte der Messungen einer Probe ohne bzw. mit Kadmium im Neutronenstrahl des Kanals n

m bzw. m' = die Anzahl der Messungen einer Probe ohne bzw. mit Kadmium im Neutronenstrahl

erfolgte die Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes des Li_2SO_4-Moleküls nach der Formel (siehe A2):

$$\sigma_T(Li_2SO_4) = \frac{1}{N_{Li}\,d} \ln \frac{N_o}{N} + K \ln \frac{\bar{N}}{N_o} \qquad (13.3)$$

mit N_{Li} = Anzahl der Li_2SO_4-Moleküle je 1 cm^3 Lösung (A2)

d = Dicke der Probe

K = Konstante (A2)

N_o = Anzahl der Neutronen der D_2O-Probe im Kanal n

N = Anzahl der Neutronen der Li_2SO_4-Probe im Kanal n

$\bar{N}$ = Anzahl der Neutronen der He-Probe im Kanal n

Der zweite Term auf der rechten Seite von (13.3) stellt die Korrektur der unterschiedlichen D_2O-Dichten in der Li-Probe und in der D_2O-Probe dar.

Nach der Formel (6.1) wird aus der Kanalnummer die Flugzeit pro Meter berechnet. Die eingestellte Kanalbreite des Flugzeitanalysators beträgt $\Delta t_A = 16$ /us. Bei der Angabe des Flugweges muss die Neutronenselbstabschirmung im BF_3-Zählrohr berücksichtigt werden (A4) : $L = (2,0080 - n \cdot 610^{-6})$m. Die Kalibrierung der Flugzeitachse ergibt: $t_o = -11,8$ /us (A3). Dieser Wert ist verschieden von dem der Pu-Messung, da mit einem anderen Neutronen-Detektor und zum Teil mit einer anderen Elektronik gemessen wird.

Der Effekt der Vielfachstreuung in den Proben kann vernachlässigt werden (A11).

14. Ergebnisse und Diskussion

Der nach (13.3) mit den Daten aus (Tab. 13.3) und den korrigierten Flugzeitspektren berechneten totalen Wirkungsquerschnitt des $^{nat}Li_2SO_4$-Moleküls zeigt Figur 13.7. Die eingezeichneten Fehler der Messpunkte geben nur den statistischen Fehler an.

Der totale Wirkungsquerschnitt des Moleküls setzt sich aus dem der einzelnen Atome zusammen:

$$\sigma_T(Li_2SO_4) = 2\,\sigma_T(Li) + \sigma_T(S) + 4\,\sigma_T(O) \qquad (14.1)$$

Wegen der 1/v-Abhängigkeit des $^6Li(n,\alpha)$-Querschnittes gilt weiter

$$\sigma_T(Li_2SO_4) = a\,\tau + 2\,\sigma_s(Li) + \sigma_T(S) + 4\,\sigma_T(O) \qquad (14.2)$$

Die einzelnen thermischen Wirkungsquerschnitte in (14.2) sind in der Literatur angegeben: $\sigma_s(^6Li) = 0,75 \pm 0,04$ b (ASAMI und MOXON, 1970), $\sigma_b(^{nat}Li) = 1,2 \pm 0,3$ b (BNL 325, 1958), $\sigma_b(O) = 4,23 \pm 0,07$ b (BNL 325, 1964), $\sigma_b(S) = 1,2 \pm 0,2$ b und $\sigma_a(S) = 0,52 \pm 0,02$ b (BNL 325, 1958). Die Indizes b bzw. a bedeuten Streuquerschnitt eines starr gebundenen Atoms bzw. Absorptionsquerschnitt.

Bekanntlich bewirkt die chemische Bindung einen Anstieg des Streuquerschnittes für Neutronenenergien unterhalb von etwa 1 eV. Der Streuquerschnitt eines starr gebundenen Atoms berechnet sich aus dem oberhalb von 1 eV gemessenen Streuquerschnitt durch Multiplikation mit dem Faktor $[(A+1)/A]^2$ (A = Atommasse des Streuers).

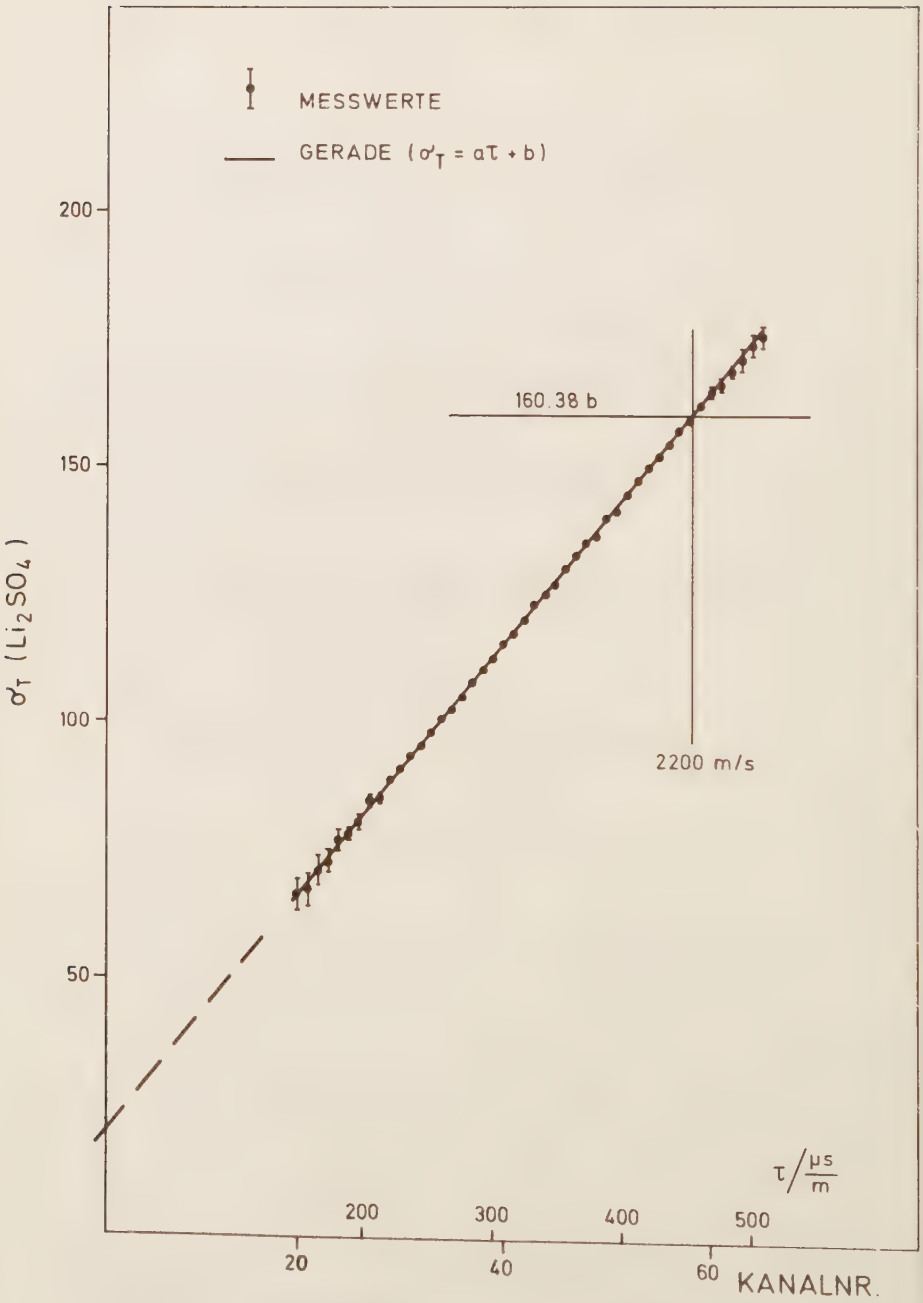

Fig. 13.7 TOTALER WIRKUNGSQUERSCHNITT VON Li_2SO_4

Die Zusammenfassung der einzelnen Beiträge ergibt für das $^{6}Li_2SO_4$-Molekül $2\sigma_s(^{6}Li) + \sigma_T(S) + 4\sigma_T(O) = 20,1 \pm 0,2$ b und für das $^{nat}Li_2SO_4$-Molekül $21,0 \pm 0,5$ b, das heisst 1% von $\sigma_T(^{6}Li_2SO_4)$ und 12,5% von $\sigma_T(^{nat}Li_2SO_4)$ bei der thermischen Energie 0,0253 eV.

Der Einfluss des Anstiegs der Streuquerschnitte für den kleinen Messbereich (0,02 - 0,2 eV) kann höchstens 0,1% bzw. 1% von dem totalen Wirkungsquerschnitt des $^{6}Li_2SO_4$ bzw. $^{nat}Li_2SO_4$ Moleküls bei 2200 m/s ausmachen. Darum ist die Näherung, die einzelnen Streuquerschnitte für diesen Messbereich als konstant anzusehen, gerechtfertigt, zumal die Konstante aus einer Anpassung von $\sigma_T(Li_2SO_4) = a\tau + b$ mit den Messwerten bestimmt wird und somit als mittlerer Wert dieses Energiebereiches aufgefasst werden kann. Für die ^{6}Li-Probe ist der Effekt der chemischen Bindung so gering, dass für b ein Wert um 20 b zu erwarten ist. Für die ^{nat}Li-Probe kann der Einfluss dieser Bindung noch bemerkbar sein, wobei b um 21 b oder kleiner sein kann, denn die Streuquerschnitte nehmen bei kleiner werdenden Flugzeiten ab.

Die Anpassungen liefern folgende b-Werte: $b(^{6}Li_2SO_4) = 50,1 \pm 4,1$ b und $b(^{nat}Li_2SO_4) = 20,0 \pm 0,3$ b. Der b-Wert der angereicherten Lithiumprobe ist gegenüber der Erwartung um den Faktor 2,5 zu gross. Dieses ist vermutlich auf in Tabelle 12.1 nicht enthaltene Verunreinigungen in der Probe zurückzuführen.

Die Ausgleichsgerade der $^{nat}Li_2SO_4$-Messwerte ist in Fig. 13.7 eingezeichnet. Fig. 13.8 zeigt einen vergrösserten Ausschnitt der Fig. 13.7. Die gestrichelten Linien deuten die 2-fache Standardabweichung an. Alle Messpunkte liegen innerhalb dieser beiden Linien.

Die Steigung der Geraden beträgt $a = (0,3089 \pm 0,0010) \frac{b}{\mu s/m}$ und der Korrelationskoeffizient $\rho(a,b) = 0,97$. Daraus berechnet sich der 2200 m/s-Wert des totalen Wirkungsquerschnittes

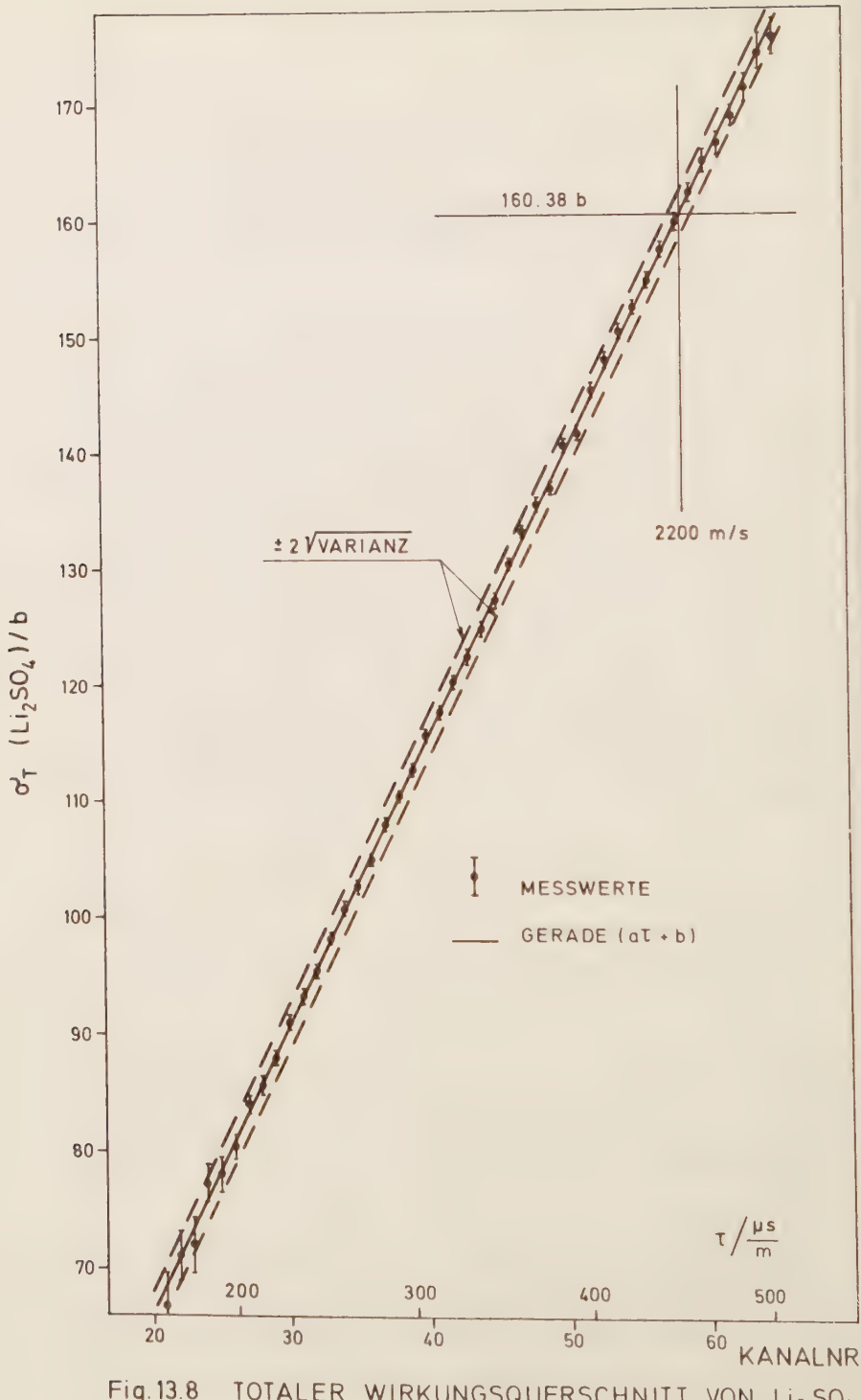

Fig. 13.8 TOTALER WIRKUNGSQUERSCHNITT VON Li_2SO_4

σ_T^o ($^{nat}Li_2SO_4$) = 160, 38 ± 0, 15 b. Der Fehler stellt den nach der allgemeinen Formel (7. 5) bestimmten statistischen Fehler dar.

Zur Berechnung des ^{nat}Li-Absorptionsquerschnitts wird der mittlere Wert b = 20, 0 b mit der 2-fachen Standardabweichung ± 0, 6 b als Fehler benutzt. Diese Verdoppelung der Standardabweichung soll die durch den kleinen Einfluss der chemischen Bindung resultierenden Unsicherheiten berücksichtigen.

Somit ergibt sich $\sigma_{n,\alpha}^o$ (^{nat}Li) = 70, 2 ± 0, 3 b (statistischer Fehler = $\sqrt{\Sigma s_i^2}$). Unter Berücksichtigung der Fehler (Tab. 12. 3) des Massengehaltes s_C = 0, 15%, der Dichte s_ρ = 0, 05%, der Probendicke s_d = 0, 03% und der Geschwindigkeit s_v = 0, 15% beträgt der totale Fehler $\sqrt{\Sigma s_i^2}$ = 0, 5%. Die Fehlerursachen für die Geschwindigkeitsangabe sind die gleichen wie bei der Plutoniummessung. Der vorläufige grosse Fehler des ^{6}Li-Gehaltes von ± 2% hat einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Angabe des Massengehaltes C.

Für den vorläufigen Wert von ^{6}Li folgt dann $\sigma_{n,\alpha}^o$ (100% ^{6}Li) = 939 ± 20 b. Hier macht sich die grosse Unsicherheit des ^{6}Li-Gehaltes 7, 48 ± 0, 15% bemerkbar. Der absolute Wert des ^{6}Li-Gehaltes wird sich wahrscheinlich wenig verändern gegenüber den hier angegebenen (DE BIEVRE, 1972).

Der in Tabelle 9. 1 angegebenen Wert $\sigma_{n,\alpha}^o$ = (944 ± 19)b wurde ebenfalls aus einer Transmissionsmessung bestimmt. Die durchgelassenen Neutronen der Li-Probe und der Leerprobe werden nicht nach ihrer Flugzeit registriert, sondern integral bei stehendem Rotor mit und ohne eine Cd-Folie im Neutronenstrahl gemessen.

Die experimentelle Zeit ist bei Anwendung dieser Methode kürzer. Diese Methode setzt aber eine genaue Kenntnis des Streuquerschnittes von Li sowie des totalen Wirkungsquerschnittes von SO_4 und des Neutronenspektrums voraus.

Das Spektrum der Neutronen im T7-Strahlrohr des BR2-Reaktors ist gut bekannt (A5).

Die Auswertung sei im folgendem kurz dargelegt:

Die Neutronenstromdichte der Neutronen im Strahlrohr setzt sich aus einem thermischen Anteil (Maxwell-Verteilung)

$$M(E)dE = M\frac{E}{E_T^2} \exp\left\{-E/E_T\right\} dE \qquad (14.3)$$

für $E \leq E_{Gr}$

mit $E_T = kT$ und einem epithermischen Anteil

$$S(E)dE = S\,\frac{1}{E}\,dE \qquad \text{für } E > E_{Gr} \qquad (14.4)$$

zusammen.

Es wird angenommen (WIRTZ und BECKURTS, 1958), dass bei der Grenzenergie E_{Gr} die Funktionswerte der beiden Verteilungen gleich gross sind (siehe auch A5). Aus einem Vergleich von (14.3) mit (14.4) lässt sich M/S bestimmen. Die Grössen Temperatur T und Grenzflugzeit τ_{Gr} werden im Anhang 5 angegeben. Die aus der Grenzflugzeit umgerechnete Grenzenergie ergibt $E_{Gr} = 0,23$ eV.

Mit Kenntnis des Neutronenspektrums lassen sich die Zählraten der Li-Probe Z(Li) und der D_2O-Probe $Z(D_2O)$ und die mit einem Cd-Filter gemessenen $Z_{Cd}(Li)$ und $Z_{Cd}(D_2O)$ formulieren:

$$Z(Li) = \int_0^{E_{Gr}} \frac{K}{\sqrt{E}}\, M(E) \exp\left\{-P(Li)\right\} dE$$

$$+ \int_{E_{Gr}}^{\infty} \frac{K}{\sqrt{E}}\, S(E) \exp\left\{-P(Li)\right\} dE$$

$$= Z(Li)_{th} + Z(Li)_{epi} \qquad (14.5)$$

$$Z_{Cd}(Li) = \int_0^{E_{Gr}} \frac{K}{\sqrt{E}} M(E) \exp\left\{ - P(Li, Cd) \right\} dE$$

$$+ \int_{E_{Gr}}^{\infty} \frac{K}{\sqrt{E}} S(E) \exp\left\{ - P(Li, Cd) \right\} dE$$

$$= Z_{Cd}(Li)_{th} + Z_{Cd}(Li)_{epi} \qquad (14.6)$$

mit $P(Li) = d\,\Sigma_T(Li_2SO_4) + d\,\Sigma_T(D_2O) + \delta\,\Sigma_T(SiO_2)$

$P(Li, Cd) = P(Li) + d_{Cd}\,\Sigma_T(Cd)$

d bzw. δ = Dicke der Probe bzw. Küvette (Tab. 12.3)

Σ_T = totaler makrosk. Wirkungsquerschnitt der entsprechenden Moleküle ($\sigma_T(Cd)$, $\sigma_T(D_2O)$ von RAINWATER et al. 1947, 1948 und $\sigma_T(SiO_2)$ vom BNL 325, 1958).

Die Zählrate $Z_{Cd}(Li)_{th}$ kann gegenüber $Z_{Cd}(Li)_{epi}$ vernachlässigt werden, dem der Cd-Wirkungsquerschnitt ist in dem Gebiet 0 - E_{Gr} relativ gross . Der Faktor K ist für alle Messungen gleich und hat deswegen auf die Bestimmung der Transmission keinen Einfluss. Analog den Beziehungen (14.5) und (14.6) werden auch die Zählraten der D_2O-Probe beschrieben, nur mit dem Unterschied, dass der Term $d\,\Sigma_T(Li_2SO_4)$ fortgelassen wird, also

$$Z(D_2O) = Z(D_2O)_{th} + Z(D_2O)_{epi} \qquad (14.7)$$

$$Z_{Cd}(D_2O) = Z_{Cd}(D_2O)_{epi} \qquad (14.8)$$

Ein Vergleich der berechneten Transmission

$$T_{berechnet} = \frac{Z(Li)_{th}}{Z(D_2O)_{th}}$$

und der gemessenen Transmission

$$T_{gemessen} = \frac{Z(Li) - F\, Z_{Cd}(Li)}{Z(D_2O) - F_o\, Z_{Cd}(D_2O)}$$

ergibt $\sigma_T^o(^6LiSO_4) = 1909$ b (umgerechnet auf 100% ^{6}Li).

Die Faktoren $F = Z(Li)_{epi}/Z_{Cd}(Li)$ und $F_o = Z(D_2O)_{epi}/Z_{Cd}(D_2O)$ korrigieren den Teil der epithermischen Neutronen, die durch die Cd-Folie hindurchgehen (Abschn. 5). Die Faktoren sind annähernd gleich: $F = 1,45$ und $F_o = 1,49$.

Mit der Annahme $\sigma_T^o(SO_4) + \sigma_s^o(Li_2) = 20$ b folgt für $\sigma_{n,\alpha}^o(Li) = 944$ b, wobei der Fehler für diese integrale Methode in der Grössenordnung weniger Prozente geschätzt wird.

SCHWERES WASSER

15. Einleitung

Die Kenntnis des totalen Wirkungsquerschnitts einer Moderatorflüssigkeit als Funktion der Energie ist von grossem Nutzen für Reaktorberechnungen. Weiterhin erlaubt sie, die differentiellen Wirkungsquerschnitte und die Streumodelle zu testen.

Der totale Wirkungsquerschnitt ist einfacher zu messen als die differentiellen. Auch der Einfluss der Atom- und Molekülbewegungen machen sich an ihm bemerkbar. Der zweifach differentielle Streuquerschnitt besitzt dagegen einen grösseren Informationsgehalt: u.a. lassen sich die Lagen der Energieniveaus unmittelbar ablesen und mittels eines Streumodelles ist es möglich, den Atomen oder Molekülen bestimmte Bewegungstypen (z.B. Oszillationen, Rotationen) zuzuordnen.

Umgekehrt kann man mit Hilfe von Rechenprogrammen, wie GASKET-FLANGE (GA-5798), unter Zugrundelegung verschiedener Streumodelle den totalen Wirkungsquerschnitt schnell und präzis angeben, der dann mit dem gemessenen verglichen werden kann.

Bisher liegen allein die Messwerte von RAINWATER et al., 1948 im thermischen Energiebereich vor. Diese Werte streuen stark, ihre Fehler sind nicht angegeben worden.

16. Totaler Wirkungsquerschnitt

Bei der Lithium-Messung (Abschn. 9 - 14) wird die Anzahl der durchgelassenen Neutronen der D_2O-Probe N_o und der Leerprobe (He) $\bar{N}$ bestimmt. Der totale Wirkungsquerschnitt berechnet sich

aus:

$$\sigma_T (D_2O) = \frac{1}{N_{D_2O} d_o} \ln \frac{\bar{N}}{N_o} \qquad (16.1)$$

Die die Teilchendichte der D_2O-Moleküle

$$N_{D_2O} = N_L \rho_o / m_o \qquad (16.2)$$

bestimmenden Grössen sind bekannt. Nach TAYLOR et al., 1969 beträgt die Loschmidtsche Konstante

$$N_L = (6,022169 \pm 0,000040) 10^{23} \text{ mol}^{-1}$$

aus dem Hb. of Chem. and Phys., 1970 folgt für die molare Masse

$$m_o = 20,0274 \text{ g/mol}$$

und die Dichte ρ_o (20°C) wird in Tabelle 12.3 angegeben.

Das als Probe verwendete schwere Wasser hat einen Reinheitsgrad von 99,76 ± 0,01 mol-%, der Rest ist hauptsächlich HDO. Dies ergibt einen Korrekturbeitrag für σ_T (D_2O) von 0,6 - 0,8%.

Den korrigierten totalen Wirkungsquerschnitt zeigt Figur 16, sowie zum Vergleich die ungenaueren Werte von Rainwater. Sie streuen grösstenteils um die Resultate dieser Arbeit. Rainwater hat seine Daten selbst mit einer Geraden

$$\sigma_T (D_2O) = (10 + 10^{-2} \tau) \text{ b}$$

approximiert.

Figur 16 zeigt eine geringere Steigung der Messkurve in dem Bereich von etwa 340 - 500 μs/m.
Die Messwerte von Rainwater geben diese Änderung nicht so deutlich wieder. Im folgenden Abschnitt wird versucht, eine Erklärung für diesen Effekt anzugeben.

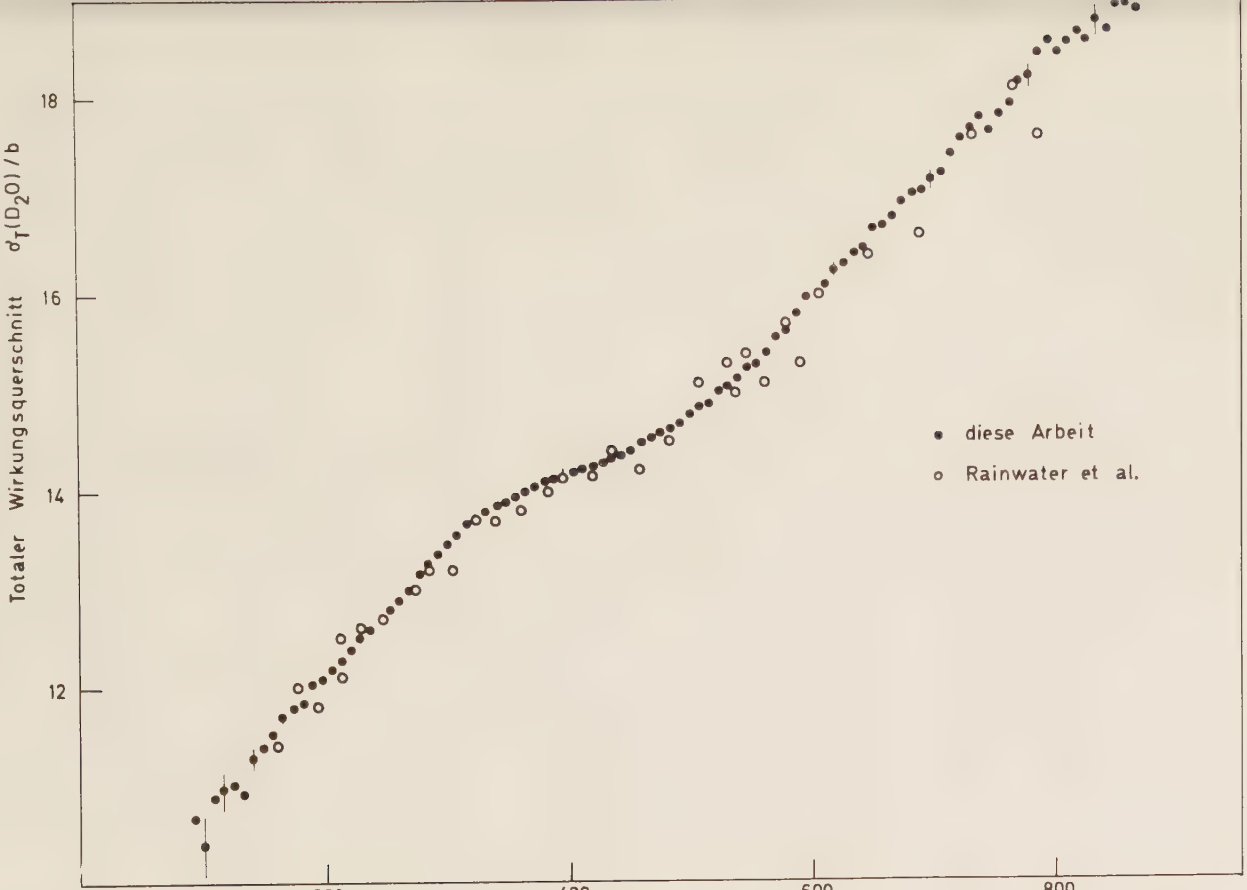

FIG. 16. σ_T ALS FUNKTION VON τ FUR SCHWERES WASSER

Der statistische Fehler der Messwerte im Bereich 300 - 600 /us/m ist relativ klein (0,10%). Der Einfluss der Unsicherheit in der Flugzeit von 0,15% (Abschn. 14) gibt für den totalen Wirkungsquerschnitt in diesem Gebiet einen maximalen Fehler von 0,06%. Zusammen mit den Fehlern für die Probendicke von 0,03% und die Probendichte von 0,05% (Tab. 13.3) ergibt sich der totale Fehler ($\sqrt{\Sigma s_i^2}$) zu 0,13%.

17. Interpretation

Die Neutronen werden an den beiden Deuterium-Atomen des D_2O-Moleküls grösstenteils kohärent gestreut. Somit wäre es möglich, die geringere Steigung in Figur 16 durch innermolekulare und zwischenmolekulare Interferenzeffekte zu erklären.

Nach PUCHER , 1967 und BUTLER, 1963 haben die Interferenzeffekte jedoch einen zu vernachlässigenden Einfluss auf den totalen Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen.

Als erster hat HONECK, 1962 - unter Anwendung des Nelkinschen Streumodelles - in inkohärenter Näherung den thermischen Wirkungsquerschnitt des schweren Wassers berechnet.

NELKIN, 1960 beschreibt die elastische und inelastische Streuung für H_2O unter folgenden vereinfachenden Annahmen (in der Dynamik unterscheidet sich D_2O nur quantitativ von H_2O):
a) Die Translationsbewegung der Moleküle behandelt er in Gasnäherung.
b) Die behinderten Rotationen der Moleküle nähert er durch einen isotropen harmonischen Oszillator mit einer effektiven Masse an.
c) Er vernachlässigt die Streuung am Sauerstoff.

Figur 17.1 skizziert den geometrischen Aufbau und die Schwingungstypen des D_2O-Moleküls im gasförmigen Zustand: (a), (b) und (c) sind innere Molekülschwingungen und (d) drei Rotationsschwingungen um die Trägheitsachsen A, B und C (die Achse C steht senkrecht

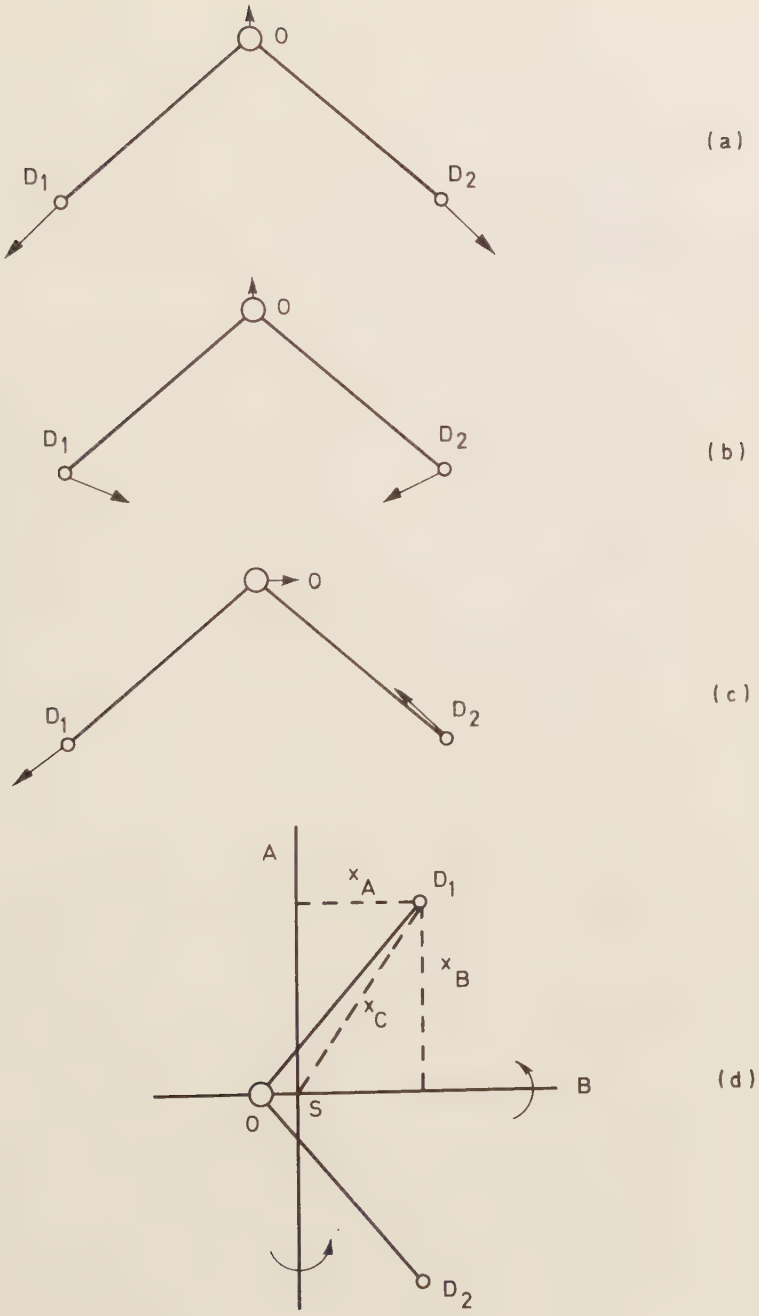

FIG. 17.1 BEWEGUNGSARTEN DES D_2O MOLEKÜLS

auf der Papierebene und geht durch den Schwerpunkt S). (a) ist eine symmetrische und (c) eine asymmetrische Schwingung (beide Schwingungsenergien sind ungefähr gleich) und (b) eine Deformationsschwingung.

Im flüssigen Zustand sind die Rotationsschwingungen behindert (Torsionsschwingungen). Anstelle der drei Rotationsschwingungen des freien Moleküls tritt ein ganzes Band mit der mittleren Schwingungsenergie von 0,05 eV (HUGHES et al., 1960) auf.

Schwingungsspektren des schweren Wassers bei 299 K zeigt Figur 17.2. Das Haywood Frequenzspektrum wird mit Hilfe der Egelstaffschen Extrapolationsmethode aus den Messwerten des zweifach differentiellen Streuquerschnittes von Haywood gewonnen (General Atomic, 1966). Ebenso ist eingezeichnet ein vereinfachtes Haywood Spektrum sowie die Energie der behinderten Rotationen nach dem Nelkinschen Modell ($\hbar\omega$ = 0,05 eV).

Folgende qualitative Angaben lassen sich der Figur 17.2. für das Nelkinsche Modell entnehmen: Neutronen mit der Energie kleiner als 0,05 eV können bei einem inelastischen Prozess Energiequanten (Phononen) z. B. von $\hbar\omega$ = 0,05 eV oder dem Vielfachen davon aufnehmen, wenn sich der isotrope harmonische Oszillator im ersten oder im höher angeregten Zustand befindet. Umgekehrt kann der Schwingungszustand einfach oder mehrfach angeregt werden, wenn die Energie der Neutronen von der Streuung gleich oder grösser als 0,05 eV ist. In gleicher Weise können die inneren Molekülschwingungen angeregt werden mit dem quantitativen Unterschied, dass ihre Schwingungsenergien grösser sind.

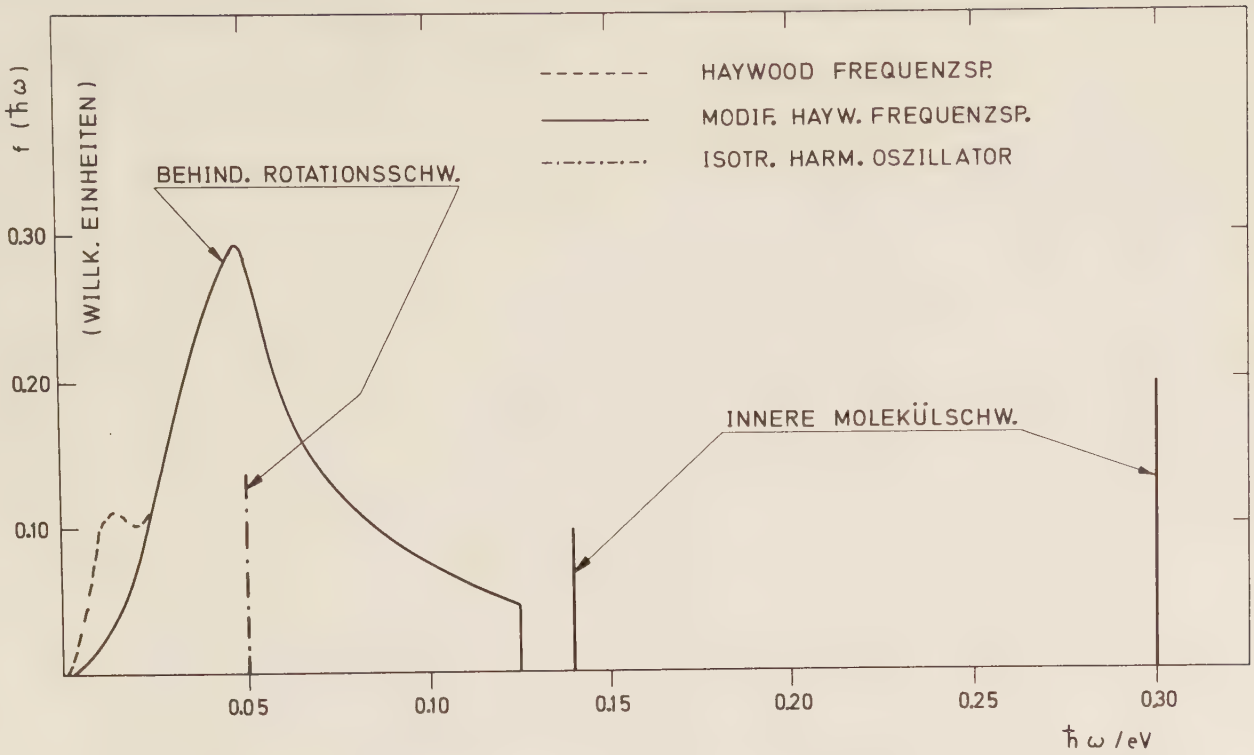

FIG. 17.2 SCHWINGUNGSSPEKTRUM FÜR SCHWERES WASSER

Bei Zimmertemperatur sind die Schwingungszustände wenig angeregt, das heisst, der inelastische Streuprozess beginnt erst für Neutronenenergien ab 0,05 eV, denn die Neutronen können nur Phononen aufnehmen, wenn höhere Zustände angeregt sind. Somit ist ein Anstieg des inelastischen Streuquerschnittes bei dieser Energie zu erwarten entsprechend etwa 320 µs/m in Richtung kleinerer Flugzeiten pro Meter.

Die berechneten Wirkungsquerschnitte unter Zugrundelegung entweder eines isotropen harmonischen Oszillators für die behinderte Rotation (KOPPEL et al., 1965, BUTLAND et al., 1969) oder des modifizierten Haywood Frequenzspektrums (General Atomic, 1966) werden in Figur 17.3 mit den Messwerten vom BR2 (Messwerte sind linear verbunden worden) verglichen. Koppel gebraucht die Formeln von Butler, die auch die Interferenzeffekte wiedergeben. Die elastische und inelastische Streuung werden nach dem Nelkinschen Streumodell beschrieben. Ebenfalls berechnet Butland nach dem Nelkinschen Modell mit Werten von Honeck die Streuquerschnitte, berücksichtigt aber noch den Einfluss der chemischen Bindung des Sauerstoffatoms.

Die von Koppel und Butland berechneten Wirkungsquerschnitte zeigen deutlich eine grössere Änderung der Steigung, die aber mit der Messkurve übereinstimmt. Dagegen weist der Verlauf der aus dem Haywood Frequenzspektrum berechneten Wirkungsquerschnitte keine grössere Änderung auf.

Figur 17.4 zeigt die nach dem Nelkinschen Modell mit den von Honeck benutzten Parametern berechnete Streuquerschnitte

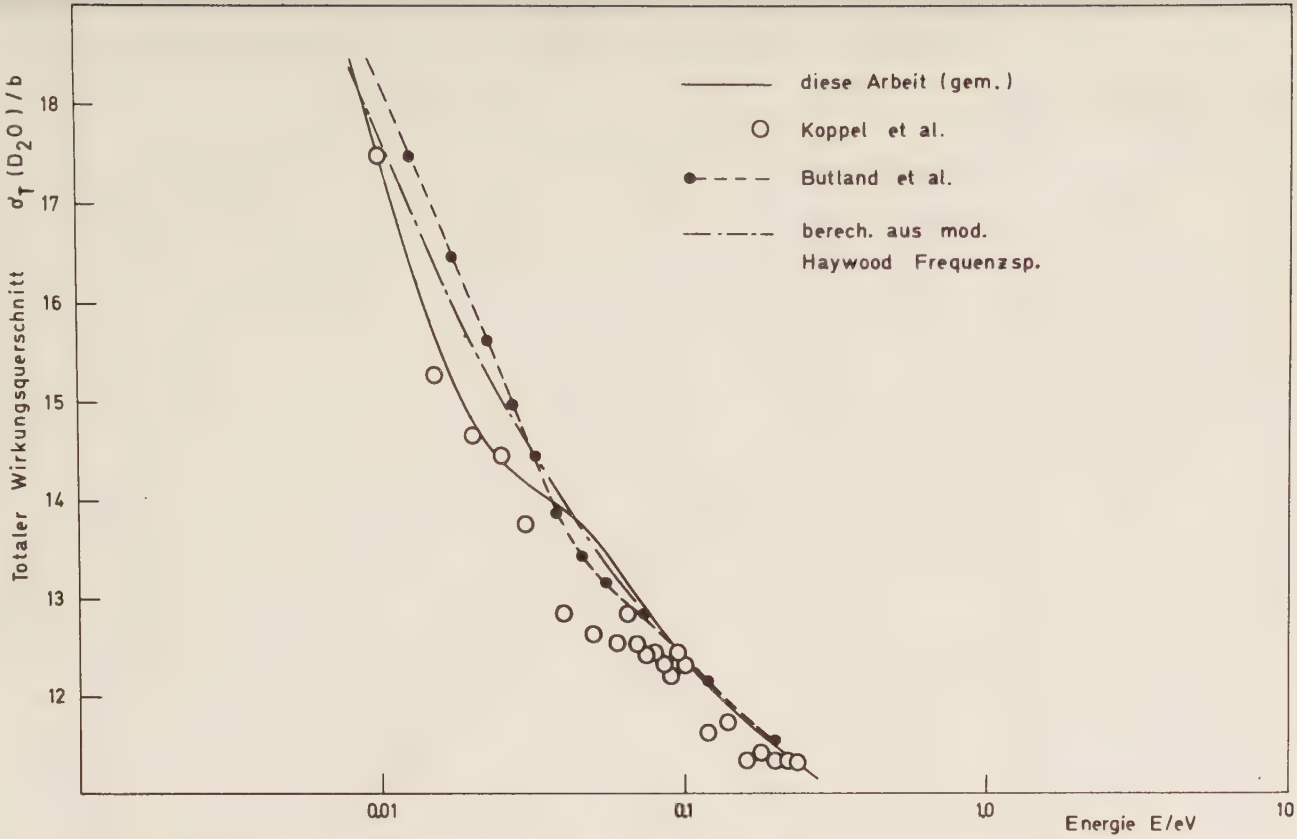

FIG. 17.3 VERGLEICH GEMESSENER UND BERECHNETER WIRKUNGSQUERSCHNITTE

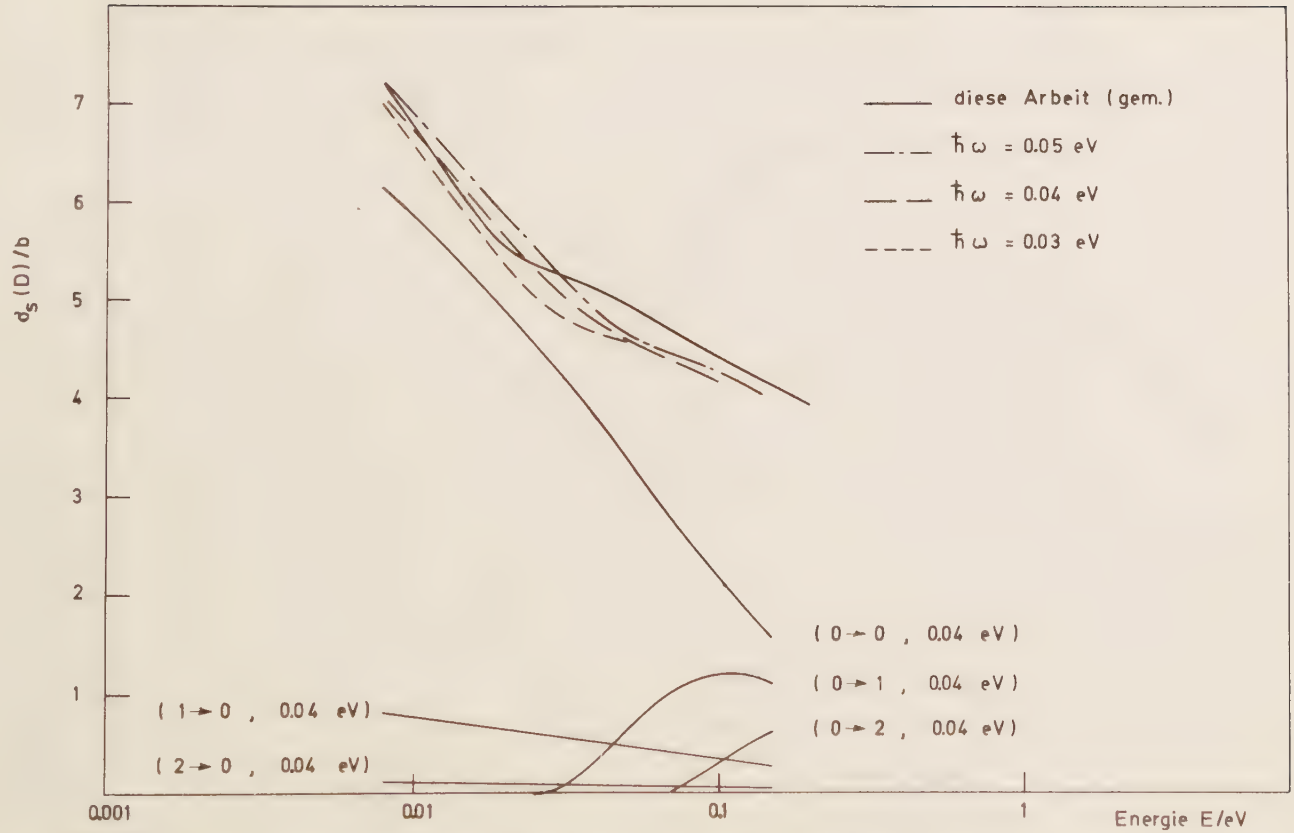

FIG. 17.4 STREU QUERSCHNITT VON D (IN INKOHÄRENTER NÄHER. BERECHNET)

$$\sigma_s(E) = \int_{(4\pi)} \frac{d\sigma(E, E', \theta)}{d\Omega}\, d\Omega; \quad d\Omega = 2\pi \sin\theta\, d\theta$$

mit dem einfach differentiellen Streuquerschnitt

$$\frac{d\sigma(E, E', \theta)}{d\Omega} = \int_0^\infty \frac{d^2\sigma(E, E', \theta)}{d\Omega\, dE'}\, dE'$$

und dem zweifach differentiellen Streuquerschnitt

$$\frac{d^2\sigma(E, E', \theta)}{d\Omega\, dE'} =$$

$$\frac{\sigma_b}{2}\sqrt{\frac{E'}{E}}\sqrt{\frac{M}{2\pi kT\hbar^2\varkappa^2}}\exp\left\{-\frac{\hbar^2\varkappa^2}{2m_v}\left(\frac{1}{3\hbar\omega_1}+\frac{1}{3\hbar\omega_2}+\frac{1}{3\hbar\omega_3}\right)\right.$$

$$\left.-\frac{\hbar^2\varkappa^2}{2m_r\hbar\omega}\coth\frac{\hbar\omega}{2kT}\right\}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\exp\left\{\frac{n\hbar\omega}{2kT}\right\}\cdot$$

$$\cdot\, I_n\left(\frac{\hbar^2\varkappa^2}{2m_r\hbar\omega\sin\left(\frac{\hbar\omega}{2kT}\right)}\right)\exp\left\{-\frac{M}{2kT\hbar^2\varkappa^2}(E' - E\right.$$

$$\left.+ n\hbar\omega + \frac{\hbar^2\varkappa^2}{2M})\right\}$$

E = Energie des Neutrons von der Streuung

E' = Energie des Neutrons nach der Streuung

θ = Streuwinkel

σ_b = Streuquerschnitt des starr gebundenen Deuteriums

M = Masse des D_2O-Moleküls

k = Boltzmannsche Konstante

T = Probentemperatur

$\hbar\varkappa$ = Impulsänderung des Neutrons bei der Streuung

$$\hbar^2 \varkappa^2 = 2m\,(E + E' - 2\sqrt{E\,E'}\cos\theta)$$

m = Masse des Neutrons

m_v = Oszillatormasse des Deuteriums für die inneren Molekülschwingungen

m_r = Oszillatormasse des Moleküls für die behinderte Rotation

$\hbar\omega_1, \hbar\omega_2, \hbar\omega_3$ = Schwingungsenergien der inneren Molekülschwingungen

$\hbar\omega$ = Schwingungsenergie der behinderten Rotation

I_n = modifizierte Besselfunktion der Ordnung n

wobei für die Schwingungsenergie der behinderten Rotation $\hbar\omega$ (isotr. harm. Oszillator) die Werte 0,05, 0,04 und 0,03 eV eingesetzt werden. Für die Energie 0,04 eV werden die Beiträge der wesentlichen Übergänge ($n = 0$, $n = \pm 1$, $n = \pm 2$) zum Streuquerschnitt des Deuteriums einzeln dargestellt: ($0 \rightarrow 0$) bedeutet elastische Streuung, ($0 \rightarrow 1, 2$) ein- bzw. zweimalige Anregung des Zustandes der behinderten Rotation, ($1, 2 \rightarrow 0$) ein- bzw. zweimalige Aufnahme des Energiequants von 0,04 eV. Die inelastische Streuung an den inneren Schwingungen in diesem Energiebereich spielt eine untergeordnete Rolle Die Figur zeigt eine geringe Übereinstimmung der berechneten mit der gemessenen Kurve.

Im Gegensatz zu dem Nelkinschen Streumodell ergeben ein Streumodell von McMURRY, 1966 und die vom Haywood ausgehenden Rechnungen bessere Anpassungen der zweifach differentiellen Streuquerschnitte (HARLING, 1968).
Das McMurry Streumodell ist eine Verfeinerung des Nelkinschen Modelles: Die D_2O-Moleküle sind teilweise ungebunden gegenüber Nachbarmolekülen und teilweise zu zwei Komplexen mit verschiedenen effektiven Massen verbunden.

Den Komplexen werden vier diskrete Torsionsschwingungen zugeordnet. Die nach diesem Modell für einzelne Übergänge der vier Torsionsschwingungen berechneten Streuquerschnitte zeigen keine grössere Änderung der Steigung.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die dynamischen Streumodelle den Verlauf des gemessenen Wirkungsquerschnittes näherungsweise wiedergeben. Nur das Nelkinsche Streumodell kann eine geringe Steigung andeuten, die allgemeine Diskrepanz zwischen der gemessenen und berechneten Kurve ist jedoch gross (bis etwa 10%).

Da das dynamische Modell von McMurry sowie die auf dem Haywood Spektrum aufbauenden Rechnungen die beobachte geringere Steigung der Messkurve weniger zu beschreiben vermögen als das grobe Nelkin Modell, ist zu vermuten, dass nicht die Dynamik des D_2O-Moleküls, sondern eher kohärente Effekte ihr Anlass sein müssen, im Gegensatz zu den Arbeiten von Pucher und Butler.

ANHANG

A1. Totzeitkorrekturformel

Im folgenden wird die Korrekturformel hergeleitet, die die Zählverluste, bedingt durch eine endliche Totzeit bei der Registrierung der Impulse, berücksichtigt:

Li-Messung:

Der Eingang des Flugzeitanalysators wird nach Ankunft eines Impulses erst dann wieder geöffnet, wenn dieser im Kernspeicher eingeschrieben ist. Diese Zeit ist für jeden Impuls die gleiche und beträgt:

$$\Delta t_T = 16\ \mu s \qquad (A1.1)$$

Allein die Totzeit Δt_T ist massgebend für die Korrekturberechnung, da weitere bei der Registrierung auftretende Totzeiten gegen Δt_T zu vernachlässigen sind.

Die Korrekturformel wird in zwei Schritten hergeleitet: Zuerst wird der Tatsache Rechnung getragen, dass nach Ankunft eines Impulses im Kanal i des Flugzeitanalysators kein weiterer in diesem Kanal registriert werden kann, da die Kanalbreite Δt_A gleich der Totzeit Δt_T ist. Zweitens wird berücksichtigt, dass der Kanal i ganz oder teilweise nach Ankunft eines Impulses im vorhergehenden Kanal i-1 geschlossen wird.

Der wahre Kanalinhalt N_i^l des Kanales i unter Berücksichtigung des ersten Schrittes beträgt nach ROSSI und STAUB, 1949

$$N_i^l = \frac{N_i^u}{1 - \tau_m N_i^{ux}} \qquad (A1.2)$$

N_i^u = unkorrigierter Inhalt des Kanales i

N_i^{ux} = unkorrigierter Inhalt pro Öffnungszeit des Kanales i

τ_m = mittlere Totzeit des Kanales i

Mit der berechtigten Annahme, dass die Impulse über der ganzen Kanalbreite Δt_A des Flugzeitanalysators mit gleicher Wahrscheinlichkeit registriert werden, ist die mittlere Totzeit gleich

$$\tau_m = \Delta t_A / 2 \qquad \text{(A1. 3)}$$

Die Öffnungszeit t_{oi} ist gleich dem Produkt aus der Öffnungsanzahl n_{oi} des Kanales i und der Kanalbreite Δt_A

$$t_{oi} = n_{oi} \cdot \Delta t_A \qquad \text{(A1. 4)}$$

und somit kann man mit (A1. 3) und (A1. 4) für (A1. 2) schreiben

$$N_i^1 = \frac{N_i^u}{1 - N_i^u / 2\, n_{oi}} \qquad \text{(A1. 5)}$$

Die Öffnungsanzahl n_{oi} ist gleich der Differenz der bekannten Anzahl n der Startimpulse des Analysators und der Schliessungsanzahl n_{zi} des Kanales i

$$n_{oi} = n - n_{zi} \qquad \text{(A1. 6)}$$

Wegen der Totzeit Δt_T (A1. 1) schliesst im Durchschnitt die Hälfte der in den Kanal i - 1 eingeschriebenen Impulse den Kanal i während einer Messung:

$$n_{zi} = N_{i-1}^u / 2 \qquad \text{(A1. 7)}$$

Der Impulsverlust ΔN_i durch die Schliessung des Kanales i wird durch die zwei folgenden Gleichungen berücksichtigt

$$N_i = \Delta N_i + N_i^l \qquad (A1.8)$$

$$\Delta N_i / N_i = n_{zi}/n \qquad (A1.9)$$

N_i = totzeitkorrigierter Inhalt des Kanales i.

Eine Zusammenfassung (A1. 5 - 9) ergibt die gesuchte Totzeitkorrekturformel

$$N_i = \frac{N_i^u}{1 - (N_{i-1}^u + N_i^u)/2\,n} \qquad (A1.10)$$

Pu-Messung:

Solange ein Impuls nach Ankunft am Eingang des Impulshöhenanalysators nicht in den Kernspeicher eingeschrieben ist, kann kein weiterer vom Flugzeitanalysator registriert werden. Diese Totzeit Δt_k ist nicht für jeden Impuls die gleiche, sie ist abhängig von der Impulshöhe. Die mittlere Totzeit beträgt:

$$\Delta t_T = \sum_{k=1}^{512} I_k \Delta t_k \Big/ \sum_{k=1}^{513} I_k \qquad (A1.11)$$

Sie ist die grösste der bei der Registrierung auftretenden Totzeiten und ebenfalls grösser als die Kanalbreite des Flugzeitanalysators.

Eine Zusammenfassung der Formeln (A1. 5, 6, 8 und 9) ergibt:

$$N_i = \frac{N_i^u}{1 - (n_{zi} + N_i^u/2)\, n} \qquad (A1.12)$$

Wegen der mittleren Totzeit ist die mittlere Schliessungszahl

$$n_{zi} = m\, N_{i-m} - N_i^u/2 \qquad (A1.13)$$

mit $m = \Delta t_T / \Delta t_A$

Δt_A = Kanalbreite des Flugzeitanalysators

Die Anzahl der Startimpulse n erhält man aus der bekannten Rotorfrequenz f und der Messdauer T:

$$n = 2\, f\, T \qquad (A1.14)$$

Das Einsetzen von (A1.13, 14) in (A1.12) ergibt die gesuchte Korrekturformel

$$N_i = \frac{N_i^u}{1 - \Delta t_T\, N_{i-m}/2\, f\, T\, \Delta t_A} \qquad (A1.15)$$

A2. Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes

Im folgenden wird die Beziehung zur Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes von Li_2SO_4 aus den experimentellen Zählraten hergeleitet.
In Tabelle A2 sind die hier verwendeten Grössen verzeichnet (wobei der Kanalindex für den makroskopischen Wirkungsquerschnitt und für die Anzahl der Neutronenimpulse fortgelassen wurde).

Tab. A2: Verzeichnis der zur Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes verwendeten Grössen

Probe	Dichte	Makr. W. -querschnitte	Anzahl der Neutronen im Kanal i	Probendicke
$Li_2SO_4 + D_2O$ - Lösung	ρ	Σ	N	d
D_2O	ρ_o	Σ_o	N_o	d_o
D_2O in Lösung	ρ_1	Σ_1	--	--
Li_2SO_4 in Lösung	ρ_2	Σ_2	--	--
Leerprobe (He)	--	$\bar{\Sigma}$	$\bar{N}$	$\bar{d}$

Es gelten folgende Beziehungen:

$$\rho = \rho_1 + \rho_2 \qquad \text{(A2.1)}$$

$$C = \rho_2/(\rho_1 + \rho_2) \qquad \text{(A2.2)}$$

$$\Sigma = \Sigma_1 + \Sigma_2 \qquad \text{(A2.3)}$$

$$\Sigma_o / \Sigma_1 = \rho_o / \rho_1 \qquad \text{(A2.4)}$$

$$N = \bar{N} \exp (- \Sigma d) \qquad (A2.5)$$

$$N_o = \bar{N} \exp (- \Sigma_o d_o) \qquad (A2.6)$$

C = Lithiumsulfat-Massengehalt

Bekannt sind ρ, ρ_o, C, d, d_o (Tab. 12.3) ; N, N_o, $\bar{N}$ werden durch das Transmissionsexperiment bestimmt. Mit (A2.1-6) erhält man für den makroskopischen Wirkungsquerschnitt von Lithiumsulfat

$$\Sigma_2 = \frac{1}{d} \ln \frac{N_o}{N} + (\frac{1}{d} - (1 - C)\frac{\rho}{\rho_o} \frac{1}{d_o}) \ln \frac{\bar{N}}{N_o} \qquad (A2.7)$$

Aus (A2.7) folgt mit N_{Li} als Anzahl der Li_2SO_4-Moleküle je cm^3

$$\sigma_T (Li_2SO_4) = \Sigma_2 / N_{Li} \qquad (A2.8)$$

Damit ist der totale Wirkungsquerschnitt des Moleküles gegeben durch

$$\sigma_T (Li_2SO_4) = \frac{1}{N_{Li} d} \ln \frac{N_o}{N} + K \ln \frac{\bar{N}}{N_o} \qquad (A2.9)$$

Mit

$$K = \frac{1}{N_{Li}} (\frac{1}{d} - (1-C)\frac{\rho}{\rho_o} \frac{1}{d_o}) \qquad (A2.10)$$

und

$$N_{Li} = \frac{N_L \rho_2}{M} = \frac{N_L \rho C}{M} \qquad (A2.11)$$

wobei

N_L = Loschmidtsche Konstante (TAYLOR et al., 1969)

M = molare Masse von Li_2SO_4 (relative Molekülmasse $\frac{m}{u}$ ist in Tab. 12.3 gegeben)

A3. Kalibrierung der Flugzeitachse

A3.1 Prinzip der Flugzeitkalibrierung

Für kleine Neutronenenergien zeigen die Streuquerschnitte kohärent streuender kristalliner Substanzen eine starke Energieabhängigkeit. Dies hängt mit der Welleneigenschaft des Neutrons zusammen. Bekannterweise ist die de Broglie-Wellenlänge:

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2mE}} = \frac{h}{mv} \qquad (A3.1.1)$$

h = Plancksches Wirkungsquantum
m = Neutronenmasse
E bzw. v = Neutronenenergie bzw. - geschwindigkeit.

Für Neutronenenergien von etwa 0,01 bis 0,1 eV ist die Wellenlänge in der Grössenordnung der interatomaren Abstände und somit können Interferenzeffekte auftreten. Die Neutronen werden kohärent elastisch gestreut, wenn die Braggsche Beziehung

$$n\lambda = 2\, d_{hkl} \sin\vartheta \qquad (A3.1.2)$$

n = Ordnung der Reflexionen
d_{hkl} = Abstand der reflektierenden Netzebenen
ϑ = Glanzwinkel

erfüllt ist. Fällt ein gut kollimierter Neutronenstrahl verschiedener Wellenlängen auf eine polykristalline Probe, dann werden Neutronen mit $\lambda < 2\, d_{hkl}$ aus der Einfallsrichtung gestreut, denn durch die zufällige Orientierung der Mikrokristalle finden alle Neutronen, deren Wellenlänge kleiner als der doppelte Netzebenabstand ist, einen Glanzwinkel ϑ vor, der der Braggschen Beziehung (A3.1.2) genügt. Dagegen werden die Neutronen mit $\lambda > 2d_{hkl}$ nicht mehr kohärent elastisch gestreut. Folglich zeigt der totale Wirkungsquerschnitt bei

$$\lambda = 2d_{hkl} \qquad (A3.1.3)$$

eine sprungartige Veränderung (sogenannte Bragg-Kante).
Bei Kenntnis der Grenzwellenlänge und somit auch der entsprechenden Neutronengeschwindigkeit v (A3.1.1) und der vom Analysator gemessenen Neutronenflugzeit t_K an der Sprungstelle des totalen Wirkungsquerschnittes kann man den Nullpunkt t_o der Flugzeitachse bestimmen.

A3.2 Anwendung auf die Li-Messung

Die experimentelle Anordnung der Transmissionsmessung ist der im Abschn. 11 beschriebenen ähnlich. Als polykristalline Substanz wird eine α-Eisenpulverprobe benutzt. Messungen mit Eisenblech ergeben eine kleineren durch Bragg-Streuung verursachten Anstieg des Wirkungsquerschnitts, da hier wegen der grossen Korngrösse die Bragg-Streuung durch Extinktion vermindert wird (WEISS, 1952). α-Eisen besitzt ein raumzentriert kubisches Kristallgitter mit dem Netzebenabstand (GLOCKER, 1949)

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \qquad (A3.2.1)$$

a = Gitterkonstante
h, k, l = Millersche Indizes

Die kohärent elastische Streuung ist u.a. proportional dem Quadrat des Strukturfaktors und dem Netzebenabstand. Der Netzebenabstand ist gross für kleine Millersche Indizes. Die kleinsten Indizes mit von Null verschiedenem Strukturfaktor sind (1 1 0). Daher wird die Kalibrierung der Flugzeitachse an der diesen Millerschen Indizes entsprechenden Bragg-Kante durchgeführt.

Das Messverfahren verläuft wie bei der Lithiummessung. Gesteuert durch einen Monitor werden ohne und mit Cd-Blech (Nulleffekt) die Flugzeitspektren der transmittierten Neutronen der Eisenpulverprobe und der Leerprobe abwechselnd gemessen. Die Flugzeitspektren werden hinsichtlich des Nulleffektes und der Totzeit nach Formel (A1.10) korrigiert.

Figur A3.1 zeigt den gemessenen Transmissionsverlauf der (110)-Kante.

Die Verbreiterung der Kante ist die Folge einer endlichen Auflösungsfunktion $R(t' - t)$. Sie hat näherungsweise die Form einer Gaussfunktion:

$$R(t'-t) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \, e^{-\frac{(t'-t)^2}{2\sigma^2}} \qquad \text{(A3.2.2)}$$

σ = Standardabweichung der Verteilung
σ^2 = Varianz der Verteilung
t', t = Flugzeit

Folgende Effekte tragen zu dieser Verteilung bei:

1. Endliche Öffnungszeit des Rotors Δt_1
2. Divergenz des Neutronenstrahles Δt_2
3. Kanalbreite des Analysators Δt_3
4. Endliche Zählrohrdicke Δt_4
5. Verzögerungszeit des Detektors Δt_5

Die Varianzen σ_i^2 $(i = 1 \ldots 5)$ der verschiedenen Verteilungsfunktionen müssen einzeln berechnet werden.

Die Verteilung $F(t')$ bedingt durch die endliche Öffnungszeit des Rotors ist nach Gl. (A8.1) mit einer Neutronengeschwindigkeit $v = 4\omega R^2/h$ in der Nähe der Kante:

$$F(t') = 1 - \frac{\omega \cdot v}{4h}\left(\frac{2R}{v} + |t'|\right)^2 \quad \text{für } |t'| \leq \frac{h}{2\omega R} \qquad \text{(A3.2.3)}$$

Die Varianz einer allgemeinen Verteilung $R(t')$ ist definiert als

$$\sigma_R^2 = \int_{-\infty}^{\infty} (t')^2 \, R(t') \, dt' \qquad \text{(A3.2.4)}$$

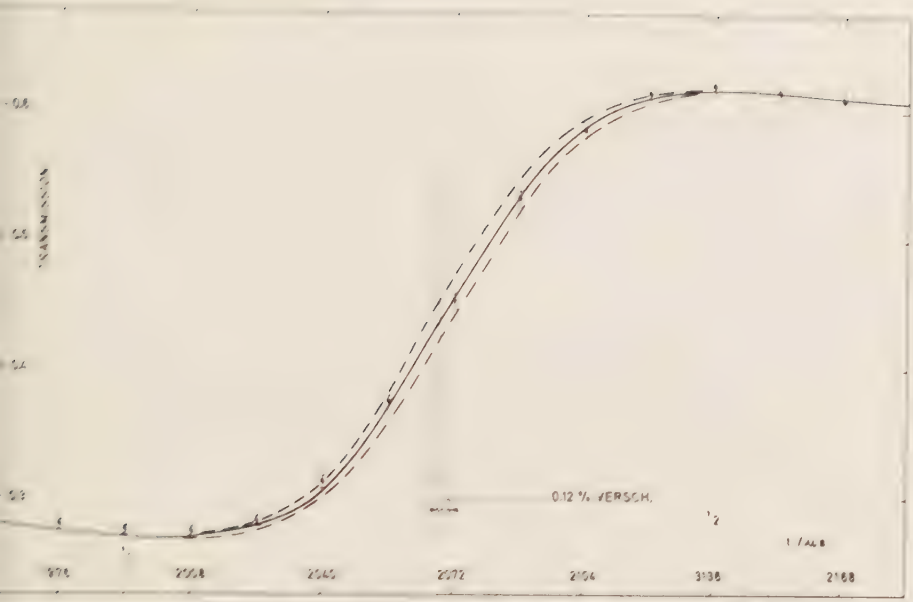

FIG. A 3.1 TRANSMISSION VON α-EISEN (FÜR Li - MESS.)

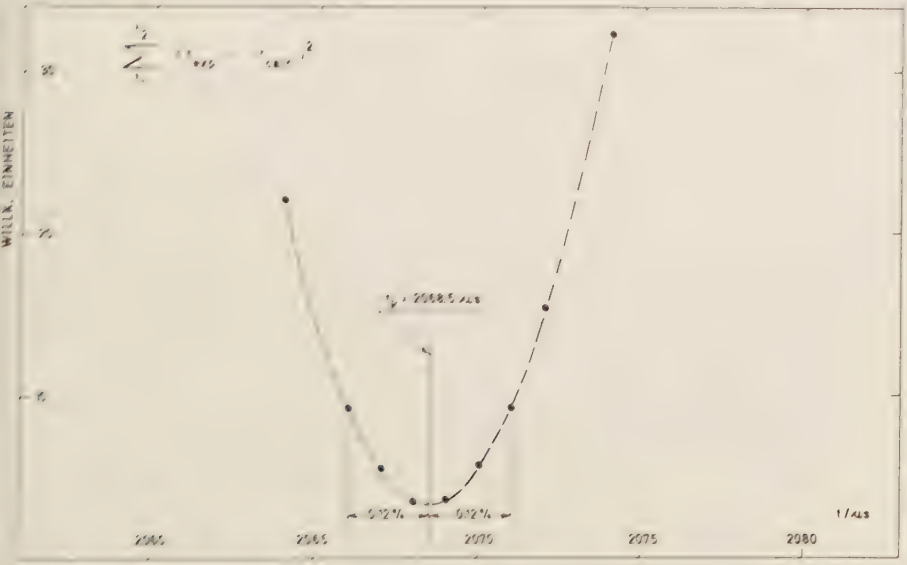

FIG. A 3.2 BESTIMMUNG DER BRAGG - KANTE (FÜR Li-MESS.)

mit der Normierung:

$$\int_{-\infty}^{\infty} R(t')\,dt' = 1 \qquad \text{(A3. 2. 5)}$$

Schreibt man

$$R(t') = K\,F(t') \qquad \text{(A3. 2. 6)}$$

so folgt aus (A3. 2. 3) und (A3. 2. 5) der Normierungsfaktor der Verteilung $F(t')$

$$K = \frac{12}{10}\,\frac{\omega R}{h} \qquad \text{(A3. 2. 7)}$$

somit liefert (A3. 2. 4)

$$\sigma_1^2 = \frac{12}{10}\,\frac{\omega R}{h}\int_{-\infty}^{\infty}(t')^2\,F(t')dt' = \frac{9}{50}\left(\frac{h}{2\omega R}\right)^2 \qquad \text{(A3. 2. 8)}$$

und mit der halben Basisbreite $\Delta t_1 = h/2\omega R = 61,3$ /us von $F(t')$ erhält man den numerischen Wert:

$$\sigma_1^2 = 671,1\ /\text{us}^2 \qquad \text{(A3. 2. 9)}$$

Die Divergenz des Neutronenstrahles und die endliche Detektoroberfläche bewirken ein früheres Öffnen und ein späteres Schliessen des Rotors gegenüber einem gut kollimierten Neutronenstrahl. Die Verteilung entspricht einer Dreiecksverteilung mit einer halben Basisbreite $\Delta t_2 = 18,3$ /us. Die Varianz einer Dreiecksverteilung lässt sich nach (A3. 2. 4) und (A3. 2. 5) einfach berechnen:

$$\sigma_2^2 = \Delta t_2^2 / 6 = 54,6\ /\text{us}^2 \qquad \text{(A3. 2. 10)}$$

Uber der ganzen Kanalbreite Δt_3 des Flugzeitanalysators werden die Impulse mit gleicher Wahrscheinlichkeit registriert. Nach (A3.2.4) und (A3.2.5) ist die Varianz einer Rechteckverteilung:

$$\sigma_3^2 = \frac{(\Delta t_3/2)^2}{3} = 21,3 \ /us^2 \qquad (A3.2.11)$$

Der Einfluss der Zählrohrdicke d auf die Flugzeit wird durch eine Kreisverteilung (ohne Berücksichtigung der Neutronenselbstabschirmung) beschrieben mit dem Ergebnis nach (A3.2.4) und (A3.2.5):

$$\sigma_4^2 = \frac{\Delta t_4^2}{4} = \frac{(d/2v)^2}{4} = 39,3 \ /us^2 \qquad (A3.2.12)$$

Wegen der endlichen Beweglichkeit der Elektronen im Zählrohrgas wird der Zählrohrimpuls verzögert. NICHOLSON, 1950 gibt für die maximale Verzögerungszeit Δt_5 (in s) die Beziehung

$$\Delta t_5 = \frac{pb^2 \ln \frac{b}{a}}{2,38\ U} \cdot 10^{-5}$$

p = BF_3-Druck in cm Hg
b = Radius des Zählrohres in cm
a = Radius des Zähldrahtes in cm
U= angelegte Spannung in V

Für den verwendeten BF_3-Detektor (12 EB 70) mit b = 1,25 cm, a = 0,05 cm, U = 2450 V ergibt sich

$$\Delta t_5 = 1,0 \ /usec$$

Dieser Wert ist klein gegenüber den übrigen Δt_i, so dass sein Beitrag zur Auflösungsfunktion vernachlässigt wird.

Die Addition der einzelnen Varianzen (BECKURTS und WIRTZ, 1964) ergibt

$$\sigma^2 = \sum_i \sigma_i^2 = 786,7 \ /us^2 \qquad (A3.2.13).$$

Daraus folgt die gesuchte Standardabweichung der obigen Gaussverteilung:

$$\sigma = 28,0 \text{ ns} \qquad \text{(A3.2.14)}$$

Die Faltung der Auflösungsfunktion mit der theoretischen Transmissionsfunktion T_{th} beschreibt den gemessenen Transmissionsverlauf T_{exp} in Fig. A3.1:

$$T_{calc} = \int_{-\infty}^{\infty} T_{th}(t')R(t'-t)dt' \qquad \text{(A3.2.15)}$$

mit

$$T_{th} = \begin{cases} T_u(t) = A_u t + B_u & \text{für } t < t_K \\ T_o(t) = A_o t + B_o & \text{für } t \geq t_K \end{cases} \qquad \text{(A3.2.16)}$$

t_K = die zu bestimmende Kantenlage

Aus einer Anpassung der Geraden (A3.2.16) mit den Messwerten eines grösseren Messbereiches vor und nach der Kante t_K werden die Konstanten A_u, A_o, B_u und B_o ermittelt.

Unter der Annahme, dass die Geraden annähernd parallel verlaufen (dies war hier der Fall), kann (A3.2.15) umgeformt werden:

$$T_{calc} = T_u(t) + (T_o(t_K) - T_u(t_K))(0,5 - I) \text{ für } t < t_K \qquad \text{(A3.2.17)}$$

mit: $$I = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\frac{t_K - t}{\sigma}} e^{-\frac{x^2}{2}} dx$$

$$T_{calc} = T_o(t) - (T_o(t_K) - T_n(t_K))(0,5+I) \text{ für } t \geq t_K \qquad \text{(A3.2.18)}$$

mit: $$I = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\frac{t_K - t}{\sigma}} e^{-\frac{x^2}{2}} dx$$

Das Integral liegt in vielen über Statistik handelenden Büchern tabelliert vor (u.a. VON MIES, 1964).

Nach der Methode der kleinsten Quadrate wird der freie Parameter t_K optimalisiert:

$$B(t_K) = \sum_{t_1}^{t_2} (T_{exp} - T_{calc})^2 \qquad (A3.2.19)$$

$$\frac{dB(t_K)}{dt_K} = 0$$

Fig. A3.2 zeigt die nach (A3.2.19) berechneten $B(t_K)$-Werte mit einem Minimum bei $t_K = 2068,5$ /us. Die diesem Wert und zwei anderen $t_K = 2068,5 \pm 2,5$ /us (0,12%) entsprechenden Transmissionskurven werden in Fig. 3.1 mit den Messwerten verglichen. Die Übereinstimmung der Messwerte mit der optimalisierten Transmissionskurve ist ausgezeichnet.

Die Berechnung der wahren Lage der Bragg-Kante mit der Gitterkonstanten a = 2,8664 ± 0,0005 Å (Hd. of Chem. and Phys., 1970) nach (A3.2.1), (A3.1.3), (A3.3.1) und dem Flugweg L = $L_o - \bar{x}$ (130) =(2,0072 ± 0,0002)m (siehe A4) ergibt $t_w = 20056,7$ /us. Der Nullpunkt der Flugzeitskala t_o der Li-Messung beträgt somit: $t_o = t_w - t_K = -11,8$ /us. Die kleinen Fehler des Flugweges (0,01%) und der Gitterkonstanten (0,02%) rechtfertigen für t_o nach Fig. A3.2 eine Unsicherheit von ± 1 /us anzunehmen.

A3.3 Anwendung auf die Pu-Messung

Gegenüber der Li-Messung wird bei der Pu-Messung ein anderer Neutronendetektor und zum Teil eine andere Messelektronik benutzt. Deswegen müssen zwei Kalibrierungen ausgeführt werden.

Die Kalibrierung der Flugzeitachse der Pu-Messung verläuft nach dem gleichen Verfahren wie die oben beschriebene.

Figur A3.3 zeigt den gemessenen Transmissionsverlauf der (110)-Kante von α-Eisen.

Mit der Gaussfunktion (A3.2.2) als Auflösungsfunktion wird die Lage der Bragg-Kante bestimmt.

Die Summe der quadratischen Abweichungen als Funktion der Flugzeit t mit dem Ergebnis für die Kantenlage

$$t_K = 2091 \text{ /us}$$

zeigt Figur A3.4.

In Figur A3.3 sind weiterhin der theoretische Kurvenverlauf (A3.2.16) und der mit der Auflösungsfunktion gefaltete Kurvenverlauf T_{calc} für die Kantenlage $t_K = 2091$ /us eingezeichnet.

Die Parabelöffnung von Figur A3.4 gibt einen Hinweis für die Unsicherheit der Bestimmung von t_K. Sie wird mit $\pm$ 1 /us angegeben.

Für den Nullpunkt der Flugzeitachse erhält man mit dem im Abschn. 6.1 angegebenen Flugweg L und der Gitterkonstanten $a = 2,8664 \pm 0,0005$ Å folgendes Resultat:

$$t_o = - 30,2 \text{ /us} .$$

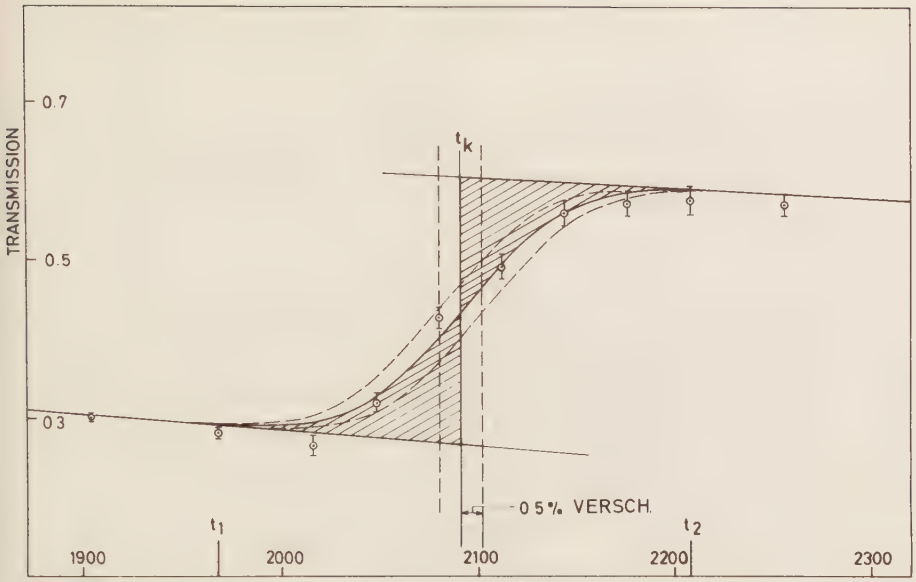

Fig. A3.3 TRANSMISSION VON α-EISEN

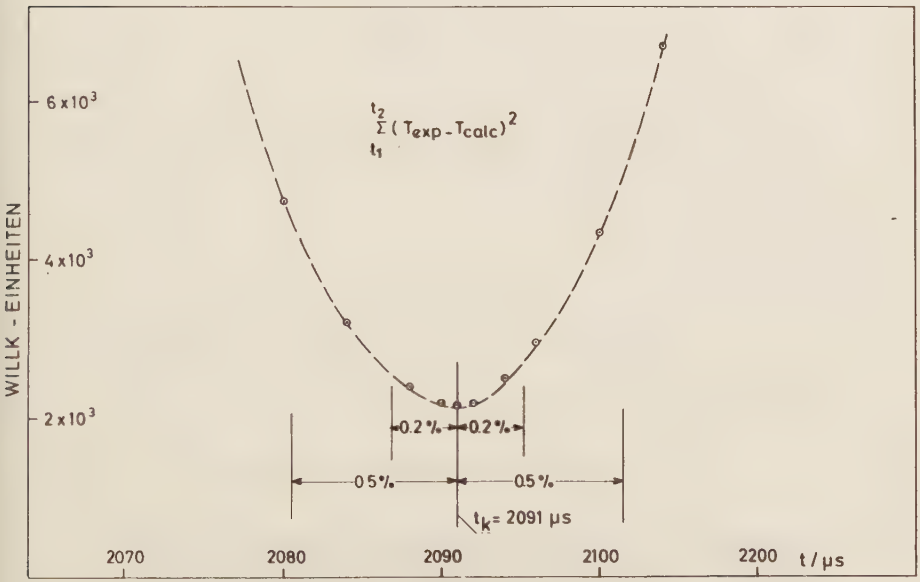

Fig. A3.4 BESTIMMUNG DER BRAGG-KANTE

A4. Mittlerer Flugweg (BF_3-Zählrohr)

Die Messung des Flugwegs L_o zwischen Rotor- und Zählrohrmitte ergibt

$$L_o = 2,0080 \pm 0,0002 \text{ m} \qquad \text{(A4.1)}$$

Der Einfluss der Neutronenselbstabschirmung verringert den gemessenen Flugweg L_o um $\bar{x}$ in Abhängigkeit von der Neutronengeschwindigkeit. Dieser Effekt lässt sich bestimmen aus der Berechnung des mittleren Weges, den ein Neutron im Zählrohr bis zu seiner Absorption zurücklegt (siehe Fig. A4):

$$\bar{x}(n) = \frac{\int_{-R}^{R} \int_{-b}^{b} x \exp(-\Sigma(n)\, d)\, dxdy}{\int_{-R}^{R} \int_{-b}^{b} \exp(-\Sigma(n) d)\, dxdy} \qquad \text{(A4.2)}$$

mit: $b = \sqrt{R^2 - y^2}$

$d = b - x$

$\Sigma(n)$ = makroskopischer Wirkungsquerschnitt des BF_3-Füllgases

n = Kanalnummer des Analysators

R = Radius des Zählrohres

Die Berechnung des Integrales ergibt:

$$\bar{x}(n) = n.6.10^{-6} \text{ m} \qquad \text{(A4.3)}$$

Der wahre Flugweg L beträgt somit:

$$L = L_o - \bar{x}(n) = (2,0080 - n.6.10^{-6})\text{m} \qquad \text{(A4.4)}$$

Der Einfluss der Neutronenselbstabschirmung ist nicht sehr bedeutend, selbst für höhere Neutronenflugzeiten verkürzt sich der Flugweg nur um 0,05%.

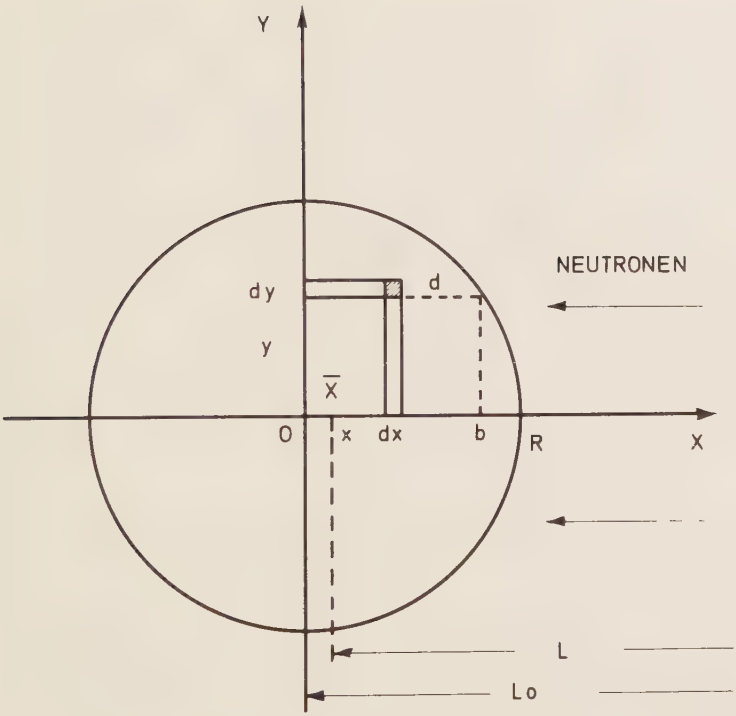

FIG. A 4 ZUR BERECHNUNG DES MITTLEREN WEGES IM BF_3 - ZÄHLER

A5. Beschreibung des gemessenen Neutronenspektrums

Die aus dem Reaktor-Core kommenden schnellen Neutronen werden in dem an der Stirnfläche des Neutronenstrahlrohres (Neutronenquelle des Flugzeitspektrometers) befindlichen Wasser moderiert (Fig. 4.1). Im Gleichgewicht mit der Wärmebewegung lässt sich die Neutronen-Verteilung durch eine Maxwell-Verteilung mit der Temperatur, die der Moderatortemperatur entspricht, beschreiben:

$$n(\tau) = K \tau^{-4} \exp\left\{-\tau_T^2 / \tau^2\right\} \qquad (A5.1)$$

mit $n(\tau)$ = Neutronendichte im Flugzeitintervall τ, $\tau + d\tau$

K = Konstante

$\tau_T = \sqrt{m/2kT}$, m = Neutronenmasse, k = Boltzmannsche Konstante, T = Neutronentemperatur.

Neben diesem thermischen Anteil des Neutronenspektrums besteht noch der 1/E-abhängige epithermische Anteil von schnellen Neutronen. Die Dichteverteilung als Funktion der Flugzeit ist konstant:

$$n_e(\tau) = K_e \qquad (A5.2)$$

Nicht genau bekannt ist, wie der Verlauf des epithermischen Anteils in eine Maxwell-Verteilung übergeht. Wie bei der integralen Li-Messung (Abschn. 13) wird der Einfachheit angenommen, dass der epithermische 1/E-Verlauf abrupt in die Maxwell-Verteilung bei einer Grenzenergie E_{Gr} übergeht.

Aus der gemessenen Form des Neutronenspektrums lässt sich die Neutronentemperatur berechnen. Fig. A5 zeigt das mit der Zählkammer (siehe Plutoniummessung, Neutronendetektor: B-Target mit Halbleiterdetektor) gemessene Neutronenspektrum.

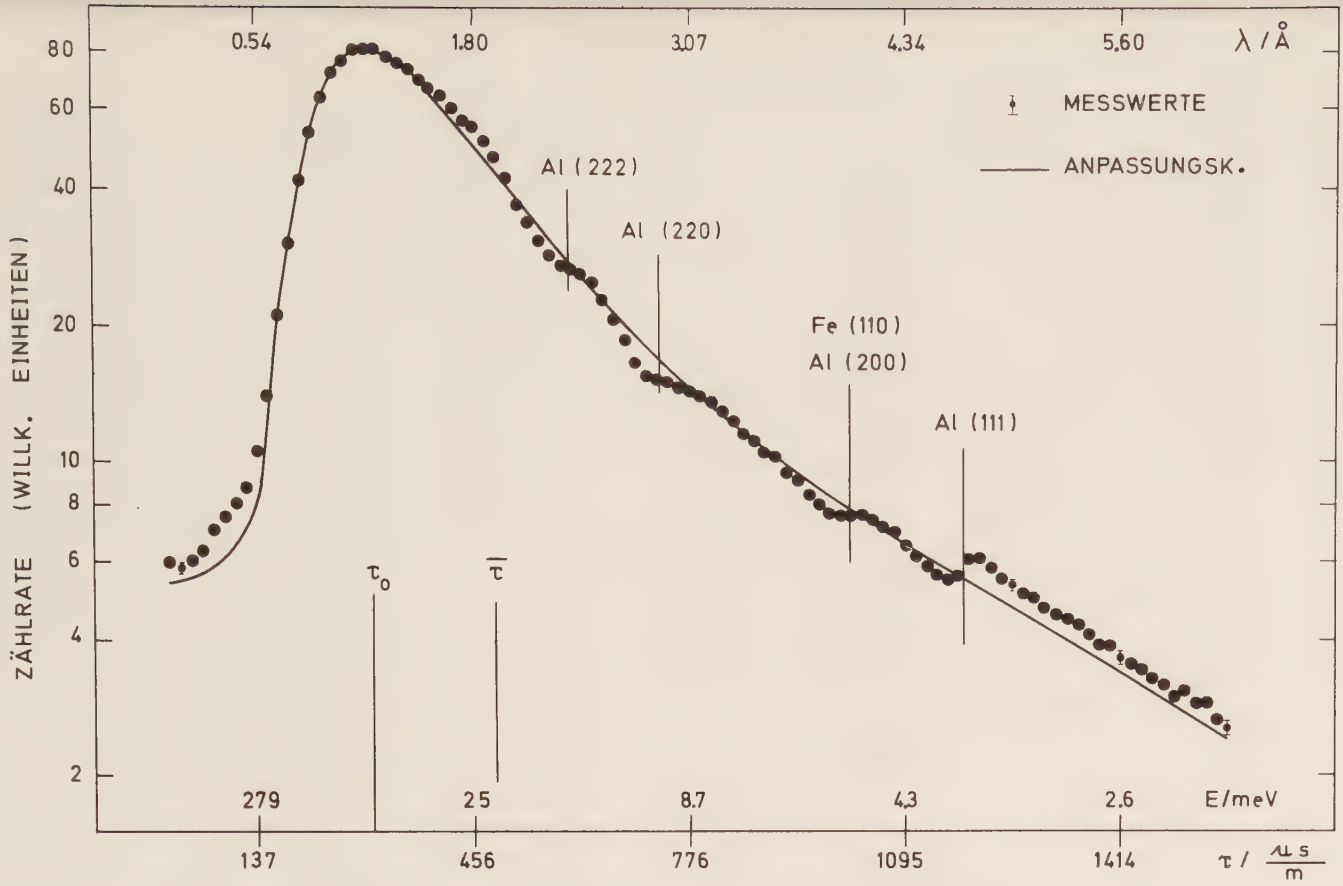

FIG. A5 NEUTRONEN SPEKTRUM (GEM. MIT. $^{1}/_{v}$ - DET. ALS FUNKT. VON τ)

Die Neutronen-Dichteverteilungen (A5.1 und A5.2) hängen mit dem gemessenen Spektrum $N(\tau)$ folgendermassen zusammen:

$$N(\tau) = A.n(\tau) . \tau^{-1} p(\tau) . g(\tau) . \varepsilon(\tau)$$

$$+ B.n_e(\tau'). \tau'^{-1} . p(\tau') . g(\tau') . \varepsilon(\tau')$$

$$+ D.E(\tau', n_e(\tau')) \text{ für } \tau' \leq \tau_{Gr} \leq \tau \qquad (A5.3)$$

mit A, B, D = Konstanten

$p(\tau)$ = Relative Rotordurchlässigkeit (A8)

$g(\tau)$ = Neutronen-Transmission von Luft(zwischen Neutronenquelle und Detektor)

$\varepsilon(\tau)$ = Nachweiswahrscheinlichkeit des Neutronendetektors (1/v -Abhängigkeit)

$E(\tau', n_e(\tau'))$ = gemessenes Neutronenspektrum mit einer Cd-Folie im Neutronenstrahl

τ_{Gr} = Grenzflugzeit entsprechend der Grenzenergie E_{Gr}

Nicht berücksichtigt wird der hier kleinere Effekt der kohärenten Streuung an den polykristallinen Materialen Aluminium und Eisen des Rotors. Die Lagen dieser Bragg-Kanten (Abschn. A3.1) von Al und Fe mit den Millerschen Indizes sind in Figur A5 eingezeichnet.

Der ungefähre Wert für die Grenzflugzeit kann der Figur A5 entnommen werden zu $\tau_{Gr} \sim 150$ µs/m. Sein Einfluss auf die Anpassung einer Maxwell-Verteilung zur Bestimmung der Temperatur T ist von geringer Bedeutung. Diese Anpassung nach der Methode der kleinsten Quadrate ergibt $T = 47 \pm 3°C$. Der Fehler beinhaltet nur den statistischen Fehler.

Die Differenz der Messkurve und der Anpassungskurve für die Flugzeiten kleiner als ~ 150 µs/m beschreibt die epithermischen Neutronen, die die Cd-Folie ohne Absorption passieren. Diesen Anteil gibt der zweite Summand auf der rechte Seite von (A5.3) an, der jedoch bei der Anpassung nicht berücksichtigt wurde.

Zur angepassten Maxwell-Verteilung seien noch andere charakteristische Parameter angegeben:

Mittlere Energie $\bar{E} = \frac{3}{2} k\,T = 0,0414$ eV

Wahrscheinl. Energie $E_o = kT/2 = 0,0138$ eV

Mittlere Geschwind. $\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_o \approx 2600$ m/s

Wahrsch. Geschwind. $v_o = \sqrt{2kT/m} \approx 2300$ m/s

Mittlere Flugzeit $\bar{\tau} = 2\,\tau_o / \sqrt{\pi/2} = 490,6$ µs/m

Wahrsch. Flugzeit $\tau_o = \sqrt{m/4kT} = 307,5$ µs/m

Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit einer Maxwell-Verteilung mit der Temperatur $T = 20,44\,°C$ ist bekannterweise $v_o = 2200$ m/s.

A6. Einfluss der Auflösung

Die gemessenen Flugzeitspektren C_f und C_α zur Bestimmung des Spaltquerschnittes von ^{239}Pu nach der Formel (2.4) werden beeinflusst durch eine endliche Auflösungsfunktion $R(t'-t)$. Diese wird durch eine Gaussfunktion mit der Varianz $s^2 = 827^2\ /\mu s^2$ (A3) beschrieben.

Der Zusammenhang des idealen Flugzeitspektrums $C^o(t)$, das nicht durch eine endliche Auflösungsfunktion beeinflusst wird, mit dem gemessenen $C(t)$ wird durch die Faltung mit der Auflösungsfunktion gegeben:

$$C(t) = \int_{-\infty}^{\infty} C^o(t')\, R(t'-t)\, dt' \qquad (A6.1)$$

(A6.1) lässt sich nach Beckurts und Wirtz, 1964 vereinfachen (Entwicklung in eine Taylorreihe und Vernachlässigung der Terme ab 3. Ordnung):

$$C(t) = C^o(t) + \frac{d^2 C^o(t)}{dt^2} \cdot \frac{s^2}{2} \qquad (A6.2)$$

Die Flugzeitabhängigkeit von C_f und C_α (2.1, 2.2) ist im wesentlichen gegeben durch

$$C_f \sim \sigma_f \cdot n(\tau)\, \tau^{-1}$$

$$C_\gamma \sim \sigma_B \cdot n(\tau)\, \tau^{-1}$$

Das Neutronendichte $n(\tau)$ ist im thermischen Bereich durch eine Maxwell-Verteilung (A5.1) gegeben. Für σ_f wird die Gerade

$$\sigma_f = (97,1 + 1,420\,\tau)\ b \quad \text{(Abschn. 6.1)}$$

angenommen und für σ_B der 1/v-Verlauf eingesetzt.
Den mit (A6.2) berechneten prozentualen Einfluss der Auflösung auf den Spaltquerschnitt zeigt Figur A6. Dieser ist kleiner als 0,05% für den Bereich 300 - 600 $/\mu s/m$.

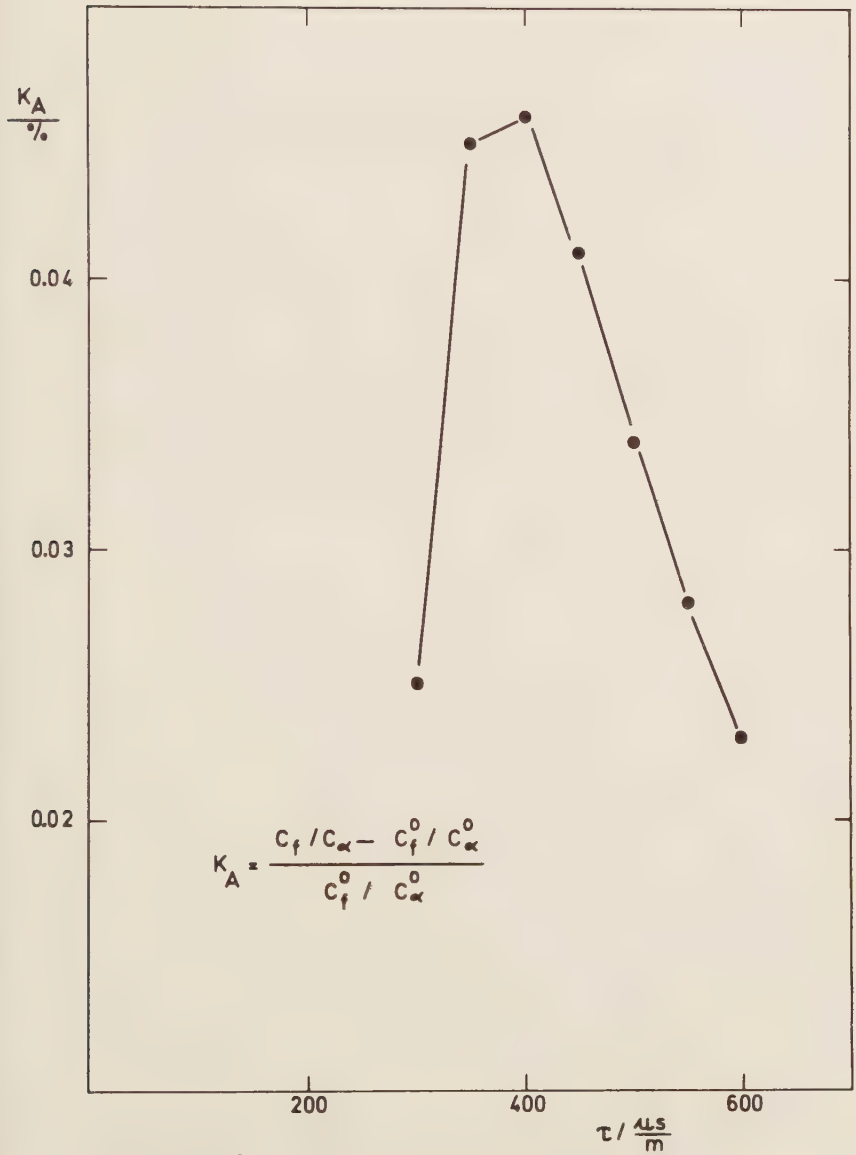

FIG. A6 EINFLUSS DER AUFLÖSUNG FÜR σ_f ALS FUNKTION VON τ

A7. Spezifische Aktivität des Pu-Targets

Die spezifische Aktivität einer radioaktiven Substanz ist definiert als die auf die Masseneinheit bezogene Zerfalls-Wahrscheinlichkeit.

Die auf einen Pu-Kern bezogene Zerfalls-Wahrscheinlichkeit ist

$$\frac{1}{N}\left|\frac{dN}{dt}\right| = \ln 2\left(\frac{N_1/N}{T_n} + \frac{N_2/N}{T_2} + \frac{N_3/N}{T_3}\right) \qquad (A7.1)$$

mit $\frac{N_1}{N}$, $\frac{N_2}{N}$, $\frac{N_3}{N}$ = Häufigkeit der Isotope ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu (Tab. 3.1)

$N = N_1+N_2+N_3$ = Anzahl der Pu-Kerne im Target

T_1, T_2, T_3 = Halbwertszeiten von ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu (Tab. 3.2, 3.3).

Die auf einen Pu-Kern bezogene mittlere Masse ist

$$\frac{M}{N} = \frac{1}{N_L}\left(M_1\frac{N_1}{N} + M_2\frac{N_2}{N} + M_3\frac{N_3}{N}\right) \qquad (A7.2)$$

mit M = Masse des Plutoniums im Target

M_1, M_2, M_3 = Molare Masse von ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu (Hb. of Chem. and Phys., 1970)

N_L = Loschmidtsche Konstante (TAYLOR et al., 1969).

Hieraus ergibt sich die spezifische Aktivität

$$A_s = \frac{\left|\frac{dN}{dt}\right|}{M} = \frac{\ln 2\left(\frac{N_1/N}{T_1} + \frac{N_2/N}{T_2} + \frac{N_3/N}{T_3}\right)}{\frac{1}{N_L}\left(M_1\frac{N_1}{N} + M_2\frac{N_2}{N} + M_3\frac{N_3}{N}\right)} \qquad (A7.3)$$

Der numerische Wert ist

$$A_s = 2269,8\ \frac{s^{-1}}{\mu g} \qquad (A7.4)$$

A8. Chopper-Funktionen

Die Form des Neutronenimpulses $F(v,t)$ und die relative Durchlässigkeit für Neutronen sind charakteristische Funktionen für den in Figur 4.2 abgebildeten Rotor.

STONE und SLOVACEK, 1956 geben ausführlich ihre Herleitung an: Mit der Annahme, dass alle Neutronen vollständig absorbiert werden, die auf die den Rotorkanal begrenzende Kadmiumwand treffen, ist die Form des Neutronenimpulses für den Geschwindigkeitsbereich der Neutronen

$4\omega R^2/h \leq v \leq \infty$ gegeben durch

$$F(v,t) = 0 \qquad t \leq -\frac{h}{2\omega R}$$

$$F(v,t) = 1 + \frac{2\omega R}{h}\, t \qquad -\frac{h}{2\omega R} \leq t \leq -\frac{2R}{v}$$

$$F(v,t) = 1 - \frac{\omega v}{4h}\left(\frac{2R}{v} - t\right)^2 \qquad -\frac{2R}{v} \leq t \leq 0$$

$$F(v,t) = 1 - \frac{\omega v}{4h}\left(\frac{2R}{v} + t\right)^2 \qquad 0 \leq t \leq \frac{2R}{v}$$

$$F(v,t) = 1 - \frac{2\omega R}{h}\, t \qquad \frac{2R}{v} \leq t \leq \frac{h}{2\omega R}$$

$$F(v,t) = 0 \qquad \frac{h}{2\omega R} \leq t$$

für $\omega R^2/h \leq v \leq 4\omega R^2/h$ gegeben durch

$$F(v,t) = 0 \qquad t \leq -\sqrt{\frac{4h}{\omega v}} + \frac{2R}{v}$$

$$F(v,t) = 1 - \frac{\omega v}{4h}\left(\frac{2R}{v} - t\right)^2 \qquad -\sqrt{\frac{4h}{\omega v}} + \frac{2R}{v} \leq t \leq 0$$

$$F(v,t) = 1 - \frac{\omega v}{4h}\left(\frac{2R}{v} + t^2\right)^2 \qquad 0 \leq t \leq \sqrt{\frac{4h}{\omega v}} - \frac{2R}{v}$$

$$F(v,t) = 0 \qquad \sqrt{\frac{4h}{\omega v}} - \frac{2R}{v} \leq t \qquad \text{(A8.1)}$$

und für $v < \omega R^2/h$ ist $F(v,t)$ gleich Null

mit h = Kanalbreite des Rotors (hier: h = 1mm; Al-Dicke)

R = Rotorradius (hier: R = 2,95 cm)

ω = konstante Winkelgeschwindigkeit des Rotors

Die Zeit t ist so gewählt, dass bei t = 0 und auch bei $t \pm \frac{n\pi}{\omega}$, n = 1, 2, 3... der Rotorkanal parallel zum Neutronenstrahl steht.

Die relative Rotordurchlässigkeit wird definiert als das Verhältnis der Fläche unter dem vom Rotor gelieferten Neutronenimpuls (A8.1) für Neutronen der Geschwindigkeit v zur Fläche für Neutronen mit $v = \infty$. Dies ergibt:

$$p(x) = 1 - \frac{8}{3} x^4 \qquad 0 \leq x \leq 0,5$$

$$p(x) = \frac{16}{3} x(1+\frac{x}{2})(1-x)^2 \qquad 0,5 \leq x \leq 1 \qquad \text{(A8.2)}$$

mit $x = R\sqrt{\frac{\omega}{hv}}$.

A9. α-Pile-up Spektrum

Das statistisch bedingte, durch Aufstockung von Detektorimpulsen der α-Teilchen des radioaktiven Pu verursachte α-Pile-up Spektrum stört die Absolutzählung der Spaltfragmente bei der Pu-Messung. Die Überlappung des α-Pile-up- und des Spaltfragmentenspektrums kann aber durch eine geeignete Zählgeometrie verkleinert werden.

Das Verhältnis $N_\alpha(m)/N_f$ gibt einen Hinweis für den Einfluss des α-Pile-up Spektrums auf das Spaltfragmentenspektrum. $N_\alpha(m)$ ist die Zahl der m-fach aufgestockten α-Impulse je Zeiteinheit und N_f die totale Zahl der Spaltfragmente je Zeiteinheit.

Unter der Annahme rechteckiger Impulse lässt sich $N_\alpha(m)$ in erster Näherung berechnen (ROSSI und STAUB, 1949):

$$N_\alpha(m) = \frac{n_o G_s}{1+n_o T G_s} \cdot \frac{(n_o T G_s)^{m-1}}{(m-1)!} \exp\left\{ - n_o T G_s \right\} \quad (A9.1)$$

mit n_o = absolute Zählrate der α-Teilchen des Pu-Targets (Tab. 3.4)

G_s = Geometriefaktor (A10.1)

T = Impulsbreite.

Für die Impulsbreite wird 1 µs angenommen, diese entspricht in etwa der des Ausgangsimpulses des benutzten Verstärkers.

N_f ist gegeben durch

$$N_f = \frac{G_s}{2} \cdot N_{Pu} \cdot S \cdot \hat{\sigma} \cdot nv_o \quad (A9.2)$$

mit N_{Pu} = Zahl der Pu-Atome pro cm^2 (Tab. 3.4)

S = Pu-Targetoberfläche (Tab. 3.4)

σ = effektiver Spaltquerschnitt (Abschn. 7)

$nv_o = v_o \int_0^\infty n(v)dv$; v_o = 2200 m/s und $n(v)$ = Neutronendichte im Geschwindigkeitsintervall v, v+ dv.

Die Neutronenstromdichte vor dem Rotor ist bekannt: $(n\,v_o)_{vor} = 7,6\;10^7\ cm^{-2}\ s^{-1}$. Ihr Zusammenhang mit der vom Rotor gepulsten Neutronenstromdichte nv_o ist folgender:

$$n\,v_o = (n\,v_o)_{vor} \cdot \frac{1}{2} \cdot \frac{h}{R_\omega} \cdot 2f \cdot p(x) \cdot \frac{h}{h+d_{Cd}} \cdot T_R$$

mit h = Rotorkanalbreite (A8)

R = Rotorradius (A8)

$\omega = 2\pi f$ = Rotorwinkelgeschwindigkeit ($f \approx 40\ s^{-1}$)

$p(x)$ = relative Rotordurchlässigkeit (A8)

d_{Cd} = 0,1 mm Dicke einer Cd-Schicht des Rotors

T_R = 0,29 Neutronen-Transmission des Rotormantels und der Aluminiumschichten des Rotors

wobei h/R_ω die Impulsbreite für Neutronen unendlicher Geschwindigkeit angibt.

Die numerischen Ergebnisse von $N_\alpha(m)/N_f$ für m = 1, 2, 3, 4, 5 als Funktion des Geometriefaktor G_s sind in Tabelle A9 aufgeführt. Der Geometriefaktor ist in Abhängigkeit des Radius a der Detektorblende berechnet. Das Verhältnis des Pile-up Spektrums zum Spektrum der Spaltfragmente nimmt für kleiner werdende Radien ab.

Für die Pu-Messung wird die Detektorblende mit dem Radius a = 9,990 mm benutzt, denn der Einfluss der 5-fach aufgestockten Impulse beträgt nur 0,1 %. Für kleinere Detektorblenden sind die aufgestockten Impulse geringer, aber auch die Zahl der zu registrierenden Spaltfragmente nimmt beträchtlich ab.

Tab. A9: Einfluss des α-Pile-up Spektrums als Funktion des Geometriefaktors

a[mm]	Ω_s	$\frac{N_\alpha(2)}{N_f}$	$\frac{N_\alpha(3)}{N_f}$	$\frac{N_\alpha(4)}{N_f}$	$\frac{N_\alpha(5)}{N_f}$
4,008	$2,74.10^{-3}$	120	0,38	0,0008	$< 10^{-3}$
4,998	$4,25.10^{-3}$	180	0,91	0,003	$< 10^{-3}$
5,493	$5,12.10^{-3}$	220	1,3	0,005	$< 10^{-3}$
9,990	$1,65.10^{-2}$	670	12,5	0,16	0,001
11,489	$2,15.10^{-2}$	850	20,9	0,34	0,005
12,486	$2,52.10^{-2}$	1000	29,0	0,56	0,008

A10. Geometriefaktor

Die Anordnung Target-Detektorblende der Pu-Messung ist in Figur A10 skizziert: a) axiale Anordnung des kreisförmigen Targets (Quelle) und der kreisförmigen Detektorblende und b) nichtaxiale Anordnung.

JAFFEY, 1953 gibt die folgende Formel für den Geometriefaktor einer axialen Anordnung und einer homogenen Quelle an:

$$G_s = \frac{2}{b^2} \int_0^b G_p \, \rho \, d\rho \qquad (A10.1)$$

G_p ist der Geometriefaktor einer Punktquelle Q in nichtaxialer Lage (Figur A10 a)):

$$G_p = \frac{z}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^a \frac{r \, dr}{R^3} \qquad (A10.2)$$

mit $R^2 = z^2 + r^2 + \rho^2 - 2 r \rho \cos\varphi$ (Alle benutzten Symbole sind in Figur A10 erklärt).

Das Integral in (A10.1) lässt sich nicht in geschlossener Form angeben. Jaffey approximiert diese Integralformel mit Hilfe einer Polynomentwicklung.

Jaffey behandelt dagegen nicht den Fall einer nichtaxialen Lage der flächenhaften Quelle gegenüber der Detektorblende. Der entsprechende Geometriefaktor kann aber nach (A10.1) mit Hilfe der Grösse g (Figur A10 b), die den Abstand von der axialen Lage bestimmt, folgendermassen berechnet werden:

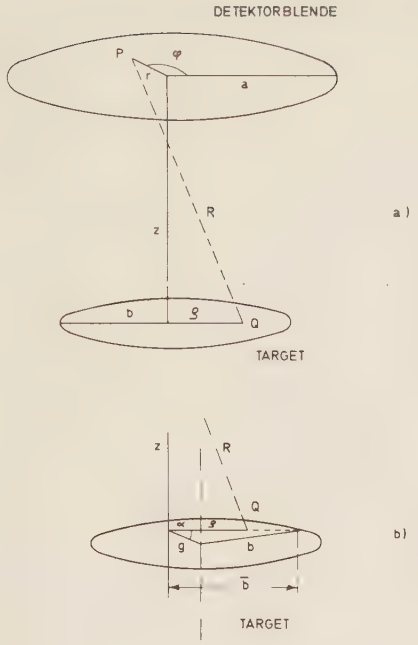

FIG. A10 a, b ZUR BERECHNUNG DES GEOMETRIEFAKTORS
a) AXIALE UND
b) NICHTAXIALE LAGE

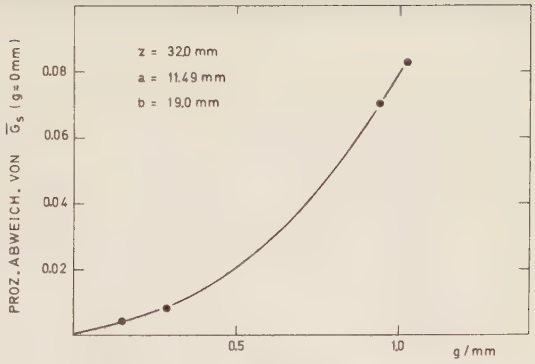

FIG. A 10.2 EINFLUSS DER NICHTAXIALEN LAGE AUF DEN GEOMETRIEFAKTOR

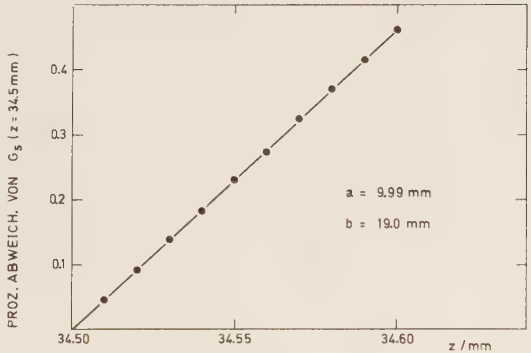

FIG. A10.3 EINFLUSS DES ABSTANDES DETEKTORBLENDE - TARGET AUF DEN GEOMETRIEF

$$\bar{G}_s = \frac{1}{\pi b^2} \int_0^{2\pi} d\alpha \int_0^{\bar{b}} G_p \, \rho \, d\rho \qquad (A10.3)$$

mit

$$\bar{b} = g \cos\alpha + (b^2 - g^2 \sin^2\alpha)^{1/2}$$

Numerische Ergebnisse nach (A10.1) und (A10.3) bezüglich der Änderung von g und z zeigen die Figuren A10.2 und A10.3 .

Mehrere Kontrollmessungen hinsichtlich der unterschiedlichen Lage des Pu- und B-Targets gegenüber der Detektorblende nach Targetwechseln ergeben: Die maximale Abweichung des Abstandes z beträgt $\Delta z = 0,02$ mm und die des Abstandes von der axialen Lage $g = 0,19$ mm. Den entsprechenden prozentualen Einfluss auf den Geometriefaktor entnimmt man den Figures A10.2 und A10.3:

$$\frac{\bar{G}_\alpha}{\bar{G}_f}(g) \hat{=} < 0,01\%$$

$$\frac{G_\alpha}{G_f}(\Delta z) \hat{=} 0,09\%$$

Die Indizes α bzw. f kennzeichnen den Geometriefaktor des B- bzw. Pu-Targets gegenüber der Detektorblende (Index s ist fortgelassen).

Die maximale Differenz bezüglich des Radius b der beiden Targets wird auf $\Delta b = 0,1$ mm geschätzt. Dies ergibt nach (A10.1):

$$\frac{G_\alpha}{G_f}(\Delta b) \hat{=} 0,04\%.$$

A11. Vielfachstreuung

Die Bestimmung des totalen Wirkungsquerschnittes nach der Transmissionsmethode verlangt, dass keine in der Probe gestreuten Neutronen den Detektor erreichen. Allein die Eigenschaften des Streumaterials (Probe) und die Zählgeometrie (Anordnung Probe-Detektor) veranlassen eine eventuelle Korrektur.

In folgenden wird die Wahrscheinlichkeit, dass in der Probe einfach oder zweifach gestreute Neutronen den Detektor noch treffen, mit der Annahme elastischer und isotroper Streuung berechnet: Ein Neutron falle senkrecht auf die Oberfläche der Probe (Fig. A11). Die Wahrscheinlichkeit, dass es den Weg in der Probe ohne Reaktion durchläuft, ist

$$p_1 = \exp\left\{ - \Sigma_t x \right\} \qquad \text{(A11.1)}$$

Σ_t = totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt.

Die Wahrscheinlichkeit, dass es auf dem Weg dx gestreut wird, ist

$$p_2 = \Sigma_s \, dx \qquad \text{(A11.2)}$$

Σ_s = makrosk. Streuquerschnitt

Die Wahrscheinlichkeit, dass es in den Kegel mit dem Raumwinkel Ω gestreut wird, ist

$$p_3 = \Omega / 4\pi \qquad \text{(A11.3)}$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass es den restlichen Weg (d-x) in der Probe ohne Reaktion durchläuft, ist

$$p_4 = \left\{ - \Sigma_t (d - x) \right\} \qquad \text{(A11.4)}$$

d = Dicke der Probe

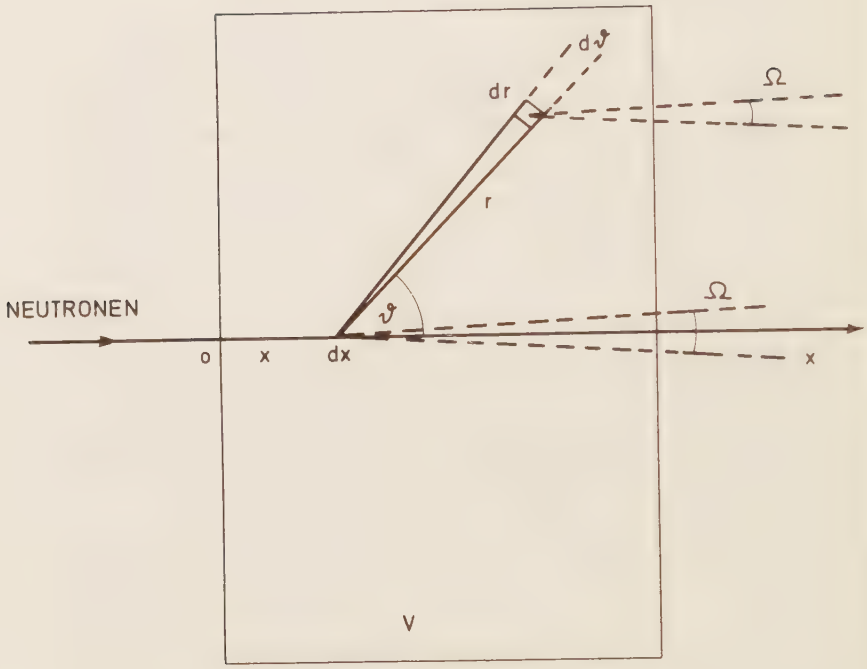

FIG. A 11 ZUR BERECHNUNG DER VIELFACHSTREUUNG IN DER Li - PROBE

Wegen der Unabhängigkeit der einzelnen Ereignisse ergibt sich aus der Multiplikation von (A4.1), (A4.2), (A4.3) und (A4.4) und der Integration über die Dicke d der Probe die Wahrscheinlichkeit P_1, dass ein Neutron mit der Einfachstreuung den Zähler erreicht

$$P_1 = \frac{\Omega}{4\pi} \Sigma_s d \exp (- \Sigma_t d) \qquad (A11.5)$$

Die gleiche Überlegung wird angestellt zur Bestimmung der Wahrscheinlichkeit P_2, dass ein Neutron nach einer Zweifachstreuung den Zähler erreicht. Die Wahrscheinlichkeit, dass es zwischen die zwei Kegelmäntel mit dem Winkel θ und $\theta + d\theta$ (siehe Fig. A11) gestreut wird ist

$$p_5 = \frac{1}{2} \sin \theta \, d\theta \qquad (A11.6)$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass es den Weg r ohne Reaktion durchläuft, ist

$$p_6 = \exp (- \Sigma_t r) \qquad (A11.7)$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass es auf dem Weg dr gestreut wird, ist

$$p_7 = \Sigma_s \, dr \qquad (A11.8)$$

Für die Wahrscheinlichkeit, dass es in den Zählkegel gestreut wird, gilt (A11.3). Die Wahrscheinlichkeit, dass es die Probe ohne Reaktion verlässt, ist

$$p_8 = \exp [- \Sigma_t (d - x - r \cos \theta)] \qquad (A11.9)$$

Die Multiplikation der einzelnen Wahrscheinlichkeiten (A11.1), (A11.2), (A11.6), (A11.7), (A11.8), (A11.9) und die Integration über das Probenvolumen führt zu dem gesuchten Resultat

$$P_2 = \frac{\Omega}{8\pi} \Sigma_s^2 \exp(-\Sigma_t d) \int_V \sin\theta \exp [- \Sigma_t . r(1 - \cos\theta)] dr \, d\theta \, dx \qquad (A11.10)$$

In der Tabelle A11 sind die numerischen Werte von

$$P = P_1 + P_2 \qquad (A11.11)$$

für verschiedene Flugzeiten der zwei Proben D_2O und D_2O-Li_2SO_4 aufgeführt. Hieraus folgt, dass die an der gemessenen Transmission anzubringende Korrektur ΔT_{vs} sehr klein und daher vernachlässigbar ist.

Tab. A11: Korrektur der Vielfachstreuung

τ (μs/m)	$P(D_2O)$	$P(D_2O\text{-}Li_2SO_4)$	ΔT_{vs} (%)
149,51	0,000050	0,000041	0,0010
308,90	0,000046	0,000030	0,0016
468,31	0,000045	0,000022	0,0023
627,74	0,000042	0,000016	0,0026
787,18	0,000036	0,000011	0,0025

LITERATURVERZEICHNIS

ALEXANDER J.M., GAZDIK M.F., Phys. Rev., 120, 874 (1960).

ASAMI A., MOXON M.C., in "Nuclear Data for Reactors", Conf. Proc. Helsinki, (1970), Vol. I, S. 153.

BECKER W., DERUYTTER A.J., WARTENA J., in "Neutron Standards and Flux Normalisation", Argonne (1970), S. 125.

BECKURTS K.H., WIRTZ K., in "Neutron Physics", Springer Verlag (1964).

BIGHAM C.B., HANNA G.C., TUNNICLIFFE P.R., CAMPION P.J., COUNSBURY M., MACKENZIE D.R., Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Vol. 16, 125, U.N., New York (1958).

BIGHAM C.B., CRRP-1183, CAECL-1910, Chalk River (1964).

BNL 325, 2. Ausg., (1958).

BNL 325, 2. Ausg., Suppl. 2, I (1964).

BNL 325, 2. Ausg., Suppl. 2, III (1965).

BORCEA C., et al., (1970) Comitetul Petru Energia Nucleara Institutul de Fizica Atomica NR-33 und private Mitteilung.

BUTLAND A.T.D., CHUDLEY C.T., AEEW-R 685 (1969).

BUTLER D., Proc. Phys. Soc., 81, 276 (1963).

BUTLER J.P., EASTWOOD T.A., COLLINS T.L., JONES M.E., ROURKE F.M., SCHUMAN R.P., Phys. Rev. 103, 634 (1956).

CAMERON A.E., J. Ann. Chem. Soc. 77, 2731 (1955).

CARSWELL D., MILSTEAD J., J. Nucl. Eng., 4, 51 (1957).

CHRIEN R.E., WASSON O.A., DRITSA S., BOKKAREE S., GARG J.B., in "Second Intern. Conf. on Nuclear Data for Reactors", Helsinki, S. 377 (1970).

CHRISTU M.I., PETRASCU M., ISBASESCU A., Rev. Roum. Phys., 14, 841 (1969).

COCKING S.J., J. Nucl. Energy, 6, 285 (1958).

COWAN G.A., BAYHURST B.P., PRESTWOOD R.J., GILMORE J.S., KNOBELOCH G.W., Phys.Rev., 144, 979 (1966).

CRAWFORD J. A., Transuranium Elements, IV-14B, Paper 16.55. Mc Graw-Hill, N. Y. (1949).

CUNNINGHAM B. B., WERNER L. B., J. Am. Chem. Soc., 71, 1521 (1949).

DE BIEVRE P. J., ZBKM Geel, Euratom, 1972, Private Mitteilung.

DEBUS G. H., DE BIEVRE P. J., Journal of Nuclear Energy, A/B 21, 373 (1967).

DERUYTTER A. J., DEBUS G., LAYER K., MORET H., PROSDOCIMI A., European Atomic Energy Community EUR. 12. e, S. 18 (1962).

DERUYTTER A. J., in "Journée d'études sur l'utilisation des détecteurs à jonction en physique nucléaire", Liège, 16-18/9/1963.

DERUYTTER A. J., "Second Conference on Nuclear Data for Reactors", Helsinki, IAEA, Vol. I, 127 (1970).

DERUYTTER A. J., Report to the Second IAEA Panel on Neutron Standard Reference Data, Wien, 20-24 10. 1972.

DERUYTTER A. J., PELFER P., J. Nucl. Eng. 21, 833 (1967).

DERUYTTER A. J., WAGEMANS C., Journal of Nuclear Energy 26, 293 (1972).

DOKUCHAEV Y. P., Soviet J. Atomic Energy, 6, 41 (1960).

ENGELKEMEIR D., WALTON G. N., AERE-R 4716 (1964).

FARRELL J. A., Phys. Rev., 175, 1371 (1968).

FARWELL G. W., ROBERTS J. E., WAHL A. C., Phys. Rev. 94, 363 (1954).

FRASER J. S., SCHWARTZ R. B., Nucl. Phys., 30, 269 (1962).

GENERAL ATOMIC (GA 7283) (1966).

GLOCKER R., in "Materialprüfung mit Röntgenstrahlen", Springer Verlag (1949).

GRAMA N. et al., Rev. Roum. Phys., 12, 43 (1967).

GREEBLER P., ALINE P. S., HUTCHINS B. A. (1966) GEAP 5272.

GUBERNATOR K., MORET H., 1968, EUR 3950 e.

HANNA G.L., WESTCOTT C.H., LEMMEL H.D., LEONARD B.R., STORY J.S., ATTREE P.M., "Revision of values for the 2200 m/s neutron constants for four fissile nuclides" Atomic Energy Review, Vol. VII, N° 4 (1969).

HARLING O.K., Nuclear Sci. and Eng. 33, 41 (1968).

HANDBOOK OF CHEMISTRY AND PHYSICS, 50. Ausg., 1970, The Chemical Rubber Co., Cleveland.

HONECK H.C., Transactions of the American Nuclear Society, 1, 47 (1962).

HUGHES D.J., PALEVSKY H., KLEY W., TUNKELO E., Phys. Rev., 119, 872 (1960).

IHLE H.R., KARAYANNIS M., MURRENHOFF A.P. (1966) IRI 347-PC.

INGHRAM M.G., HESS D.C., FIELDS P.R., PYLE G.L., Phys. Rev. 83, 1250 (1951).

JAFFEY A.H., The Rev. of Sci. Instr., 25, 349 (1954).

KEITH R.L.G., McNAIR A., RODGERS A.L., Journal of Nuclear Energy, 22, 477 (1968).

KOPPEL J.V., YOUNG R., Nukleonik, Band 7, 408 (1965).

LEONARD B.R., FRIESEN W.J., SEPPI E.J., AW-48893, S. 98, Hanford (1957).

MARKIN T.L., J. Inorg. Nucl. Chem., 9, 320 (1959).

McMURRY H.L. (1966) IN-1020.

MEADOWS J.W. in "Neutron Standards and Flux Normalization", Argonne (1970) S. 129.

MELKONIAN E., METHA G.K., in "Physics and Chemistry of Fission" Salzburg, 1965, Vol. II, S. 355, IAEA, Wien.

MEILER J.M., WALKER F.J., SCHMITT H.W., Phys. Rev., 149, 894 (1966).

MELKIN M., Phys. Rev., 119, 741 (1960).

NICHOLSON K.P., AERE N/R 1639 (1955).

NIELSEN J., DIETRICH O., Phys. Rev. 133B, 925 (1964).

OETTING F.L., in "Thermodynamics of Nuclear Materials", (1967), IAEA, Wien.

OETTING F.L., RFP 1469 (1971).

PAUWELS J., LE DUIGOU Y., LAUER K.F., Euratom Report EUR 3656 e (1967).

PAUWELS J., LAUER K.F., LE DUIGOU Y., DE BIEVRE P., DEBUS G.H., Anal. Chim. Acta 43, 211 (1968)

PRATT W.W., MUCKENTHALER F.J., SILVER E.G., ORNL-2081, S. 102, Oak Ridge (1956).

PROSDOCIMI A., DERUYTTER A.J., Journal of Nuclear Energy A/B 17, 83 (1963).

PUCHER M., Nukleonik, Bd. 10, Heft 3, S. 1967 (1967).

RAE E., in "Neutron Standards and Flux Normalization", Argonne (1970) S. 505.

RAFFLE J.F., 1959, AERE-R-2998.

RAINWATER L.J., HOWENS W.W., DUNNING J.R., WY C.S., Phys. Rev., 71, 65 (1947).

RAINWATER L.J., HOWENS W.W., DUNNING J.R., WY C.S., Phys. Rev. 73, 733 (1948).

REGIER R.B., BURGUS W.H., TROMP R.L., SORENSEN B.H., Phys. Rev., 119, 2017 (1960).

ROSSI B.B., STAUB H.H., in "Ionization Chambers and Counters" Mc Graw Hill Book Co, Inc (1949).

SAFFORD G.J., TAYLOR T.I., RUSTAD B.M., HAVENS W.W., Phys. Rev. 119, 1291 (1960).

SAUTER G.D., BOWMAN C.D., Phys. Rev. Lett., 15, 761 (1965).

SIMPSON F. et al., Nucl. Phys. A 164, 34 (1971).

STONE R.S., SLOVACEK R.E., KAPL-1499 (1956).

STOUT J.W., JONES W.M., Phys. Rev., 71, 582 (1947).

TAYLOR B.N., PARKER W.H., LANGENBERG D.N., Rev. of Mod. Phys. 41, 375 (1969).

TORASKAR J., MELKONIAN E., Phys. Rev. **C** 4, 267 (1971).

TUNNICLIFFE P.R., CRGP-458, Chalk River (1951).

UTTLEY C.A., DIMENT K.M., AERE-PR/NP 15, S. 12, und PR/NP 16, S. 3.

VOGT E., Phys. Rev., 112, 203 (1958).

VOGT E., Phys.Rev., 118, 724 (1960).

VOGT E., Phys. Rev., 34, 723 (1962).

VON MIES R., in "Mathematical theory of probability and statistics", Academic Press (1964).

WAGNER G., PILZ A., HIGATSBERGER M.J., Monatsh. 85, 464 (1954).

WALKER D.H., International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 16, 183 (1966).

WALLMANN J.C., 1951, UCRL-1255.

WAGEMANS C., DERUYTTER A.J., in "Europe Conf. on Nucl. Phys.", Aix-en-Provence (Juni 1972).

WEISS A., Phys. Rev., 86, 271 (1952).

WESTCOTT C.H., AECL N° 407 (1957).

WESTCOTT C.H., EKBERG K., HANNA G.C., PATTENDEN N.J., SANATANI S., ATTREE P.M., Atomic Energy Review 3 (1965).

WESTRUM E.F., NNES. PPR, 14B, 1717 (1949).

WESTRUM E.F., Phys. Rev., 83, 1249 (1951).

WIGNER E.P., Revs. Modern Phys., 70, 606 (1946).

WIGNER E.P., EISENBUD L., Phys. Rev. 72, 29 (1947).

WIRTZ K., BECKURTS K.H. in "Elementare Neutronenphysik", Springer Verlag, 1958, S. 170.

ZBKM, Zentralbüro für Kernmessungen, Euratom, Geel (Belgien)

Die vorliegende Arbeit wurde im Zentralbüro für Kernmessungen (Euratom) in Geel, Belgien und in der Abteilung Neutronen-Physik des belgischen Atomzentrums (SCK-CEN) in Mol durchgeführt.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. W. Walcher, danke ich für sein Interesse und die kritische Durchsicht dieser Arbeit.

Dem Leiter der Abteilung Neutronen-Standards, Euratom, Geel, Herrn Dr. A. J. Deruytter danke ich für die Anregung dieser Arbeit, sowie für laufende Unterstützung.

Desgleichen danke ich dem Leiter der Abteilung Neutronen-Physik, Herrn Dr. M. Nève de Mévergnies, für die Bereitstellung des mechanischen Flugzeitspektrometers am Strahlrohr T7 des belgischen Reaktor BR2 zur Durchführung der Neutronen-Messungen und zahlreiche Diskussionen.

Ausserdem danke ich allen Mitarbeitern, die zu dieser Arbeit beigetragen haben, insbesondere Frau Hilda Depuydt und Herrn Dr. L. Schotsmans (Rechenprogramme), Herrn Dr. H. Moret und Dr. H. Eschbach (Herstellung und Wägung der Bor-Targets) Herrn A. Spernol, Herrn Dr. V. Verdingh, Herrn Dr. K. Lauer und Herrn Dr. Y. Le Duigou (Herstellung und einer teilweisen Definition des Pu-Targets und der Li_2SO_4-Lösung) und Herrn Dr. P. De Bièvre (Isotopische Analyse).

LEBENSLAUF

Am 21. Juni 1940 wurde ich, Wilhelm Becker, als ältester Sohn des Landwirts Heinrich Becker und seiner Ehefrau Emilie Becker, geb. Schmale, in Wolfhagen geboren. Von 1946 bis 1955 besuchte ich die Volksschule in Wolfhagen. Anschliessend arbeitete ich im Väterlichen Betrieb und schloss nach dreijährigem Besuch der Berufsschule in Wolfhagen die landwirtschaftliche Lehre ab. Ausserdem ging ich von 1956 bis 1958 zum Abendgymnasium in Kassel und dann auf das Gymnasium in Wolfhagen. Dort legte ich im März 1962 die Reifeprüfung ab.

Im Sommer-Semester 1962 begann ich an der Philipps-Universität in Marburg das Studium der Physik. Im Sommer-Semester 1964 legte ich dort die Diplom-Vorprüfung und im Sommer-Semester 1966 die mündliche Diplom-Hauptprüfung ab. Vom Herbst 1966 bis zum Sommer 1968 arbeitete ich an meiner Diplom-Arbeit mit dem Thema: "Zur Hyperfeinstruktur der Resonanzlinien im Ba-II-Spektrum" (teilweise veröffentlicht in: Zeitschrift für Physik 216, 142-152, 1968).

Im Herbst 1968 begann ich als Euratomstipendiat im Zentralbüro für Kernmessungen in Geel, Belgien mit meiner Doktorarbeit (teilweise veröffentlicht in: Nuclear Data for Reactors, Vol. I, 117-125, Helsinki 1970, IAEA und: Neutron Standard und Flux Normalisation, 125-128, Argonne 1971).

Seit 1968 bin ich mit der Belgierin Gerda Becker, geb. Van den Berghe, verheiratet. Wir haben zwei Kinder.